ORSAY
Série A,
N° d'ordre
1160

# THESE

présentée

UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

PAR

ROCHER André Marc.

1ère THESE : "Contribution à l'étude des contrastes en microscopie électronique à très haute tension : application à la pénétration utile et au phénomène de tension critique".

*Soutenue le* 28-06-1973 *devant la Commission d'examen.*

MM. R. CASTAING — *Président.*

J. FRIEDEL )
B. JOUFFREY )
F. PERRIER ) — *Examinateurs.*
Y. QUERE )

ORSAY
Série A,
N° d'ordre
1160

# T H E S E

présentée

UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

PAR

ROCHER André Marc.

---

1ère THESE : "Contribution à l'étude des contrastes en microscopie électronique à très haute tension : application à la pénétration utile et au phénomène de tension critique".

*Soutenue le* 28-06-1973 *devant la Commission d'examen.*

MM, R. CASTAING — *Président.*

J. FRIEDEL )
B. JOUFFREY )
F. PERRIER ) — *Examinateurs.*
Y. QUERE )

---

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

A mes Parents

REMERCIEMENTS

Cette Etude commencée au Laboratoire de Physique des Solides de la Faculté des Sciences d'Orsay, s'est poursuivie au Laboratoire d'Optique Electronique du CNRS à Toulouse.

J'exprime mes vifs remerciements à Monsieur le Professeur R. Castaing, qui m'a accueilli dans son Laboratoire et qui a bien voulu accepter de présider ce jury.

Je remercie Monsieur le Professeur J. Friedel pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail et pour les encouragements qu'il m'a prodigués.

Que Monsieur Y. Quéré trouve ici l'expression de toute ma reconnaissance, pour avoir suivi cette étude et accepté de participer à ce jury.

Je suis très reconnaissant à Monsieur le Professeur F. Perrier de m'avoir accueilli au Laboratoire d'Optique Electronique à Toulouse et de me faire l'honneur de juger ce travail.

C'est à Monsieur Jouffrey, que va toute ma gratitude. Il sait combien les discussions que nous avons eues ensemble et les conseils dont il m'a fait bénéficier, ont permis à ce travail de voir le jour. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde amitié.

Je ne saurais oublier mes camarades, chercheurs et techniciens qu'ils soient du Nord ou du Sud de la Loire pour avoir su créer une ambiance amicale et dynamique.

Je remercie en particulier ceux qui ont collaboré directement à la réalisation de ce travail : J. Crestou, qui a préparé avec maestria les échantillons. J. Bilotte, C. Jouret, J.C. Lacaze, R. Sirvin qui en interprétant mes volontés, ont rendu mon travail passionnant.
E. Barbey pour le soin et la patience avec lesquels il a mis en valeur les planches de ce mémoire. Mademoiselle Puertolas pour la dactylographie du texte. Enfin le service administratif du Laboratoire pour l'aide efficace qu'il a apporté à la réalisation matérielle de cette thèse. Enfin, le personnel des centres de calcul de l'Université Paris-Sud, et de l'Université Paul Sabatier de Toulouse, où ont été effectués tous les calculs.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552718_0031

# INTRODUCTION

La miscroscopie électronique par transmission a évolué vers les très hautes tensions par paliers successifs. Dès 1941, Müller et Ruska [1] d'une part, Zworykin, Hillier et Vance [2] d'autre part, ont construit des microscopes fonctionnant à des tensions accélératrices de 200 kilovolts. Cette évolution se fit ensuite assez lente puisqu'il fallut attendre près de vingt ans pour atteindre, sous l'impulsion de Dupouy et Perrier, le million de volts en 1960 [3] et les 3 millions de volts en 1969 [4].

Parallèlement on peut noter la réalisation par Cosslett d'un appareil de 750 kilovolts [5] et tout récemment la mise en fonctionnement au Japon d'un microscope électronique qui pourra fonctionner sur des tensions de 3 millions de volts [6]. A ce jour, une trentaine de microscopes utilisant des tensions de travail supérieures à 600 kilovolts sont en service dans le monde.

Les applications nouvelles et les avantages d'une telle technique sont nombreux. Nous citerons en particulier :

- l'augmentation de l'épaisseur observable aux très hautes tensions. Il est possible d'étudier des échantillons dont le comportement est plus proche des matériaux massifs. En particulier leur étude stéréographique apporte des informations plus significatives qu'à basse tension.

- la diminution de l'aberration chromatique. Très nette jusqu'à 1 million de volts, elle permet une bonne résolution et une excellente conservation des contrastes même pour des échantillons épais.

- l'étude des défauts d'irradiation. Les microscopes à très hautes tensions sont bien adaptés à l'étude des effets dûs aux défauts ponctuels créés par les électrons, puisque l'irradiation est menée "in situ". En effet, un électron peut être soit particule incidente dans l'irradiation, soit porteur de l'information fournissant le contraste.

Toutefois, la formation de tels défauts peut masquer ou perturber certains phénomènes à étudier. L'étude de la recristallisation, par exemple, nécessite quelques précautions. Les résultats, en particulier la cinétique de ce phénomène, peuvent être entachés d'erreur si la tension accélératrice est assez élevée pour que des défauts ponctuels soient ainsi créés.

- l'amélioration du pouvoir de résolution théorique. Cependant la stabilité mécanique de tels appareils, difficile à réaliser, n'a pas permis, jusqu'à présent, de vérifier expérimentalement ce résultat.

Pour notre part, nous nous sommes intéressés à l'utilisation de très hautes tensions dans deux domaines.

- l'effet de tension critique

- la pénétration utile.

La tension critique a été mise en évidence par Nagata et Fukuhara [9] d'une part, et Uyeda [10] d'autre part. Dans des conditions particulières d'orientation et de tension, deux nappes de la surface de dispersion sont en contact. Ce phénomène est expliqué par la théorie dynamique à N ondes. Un effet particulier sur les contrastes d'intensité est observé. Il permet de comparer entre eux les facteurs de diffusion théoriques déterminés par différentes méthodes et de choisir celui qui donne le meilleur accord entre la théorie et l'expérience.

Nous avons vu plus haut que l'un des principaux intérêts des hautes tensions est l'augmentation de l'épaisseur observable des échantillons. Pour de fortes épaisseurs, les électrons peuvent encore fournir une information sur la structure et les défauts du cristal, s'ils conservent une cohérence non négligeable. Cette cohérence se détériore quand le nombre des interactions inélastiques ou quasi-élastiques subies par les électrons avec le cristal devient trop important.

La pénétration est étudiée en fonction de la tension et de l'orientation dans des échantillons de cuivre et d'aluminium. La théorie dynamique à N ondes permet de comprendre et d'expliquer certains résultats expérimentaux.

Nous complétons ainsi jusqu'à 3 millions de volts certains résultats de Humphreys [7] qui utilise une approche théorique analogue pour l'aluminium, le fer et l'or, d'une part, et d'Ayroles et Mazel [8] dans l'aluminium pour des tensions allant jusqu'à 1,2 millions de volts d'autre part.

Ce travail rentre dans le cadre d'une étude générale menée au laboratoire sur la pénétration utile jusqu'à une tension de 3 millions de volts.

Bien que l'ensemble de cette étude ait nécessité une importante utilisation d'ordinateur pour résoudre les équations de la théorie dynamique à N ondes, nous dévolopperons principalement les résultats des calculs en essayant d'en extraire les conséquences physiques.

. . .

Avant de commencer l'étude de la théorie dynamique, il est bon de rappeler quelques ordres de grandeurs de paramètres en fonction de la tension accélératrice des électrons. Ils sont rassemblés dans le tableau ci-dessous :

| | $\frac{m}{m_o} = \sqrt{1-\beta^2}$ | $\lambda$(Å) | $\frac{1}{\lambda}$ Å$^{-1}$ | $\beta = \frac{v}{c}$ |
|---|---|---|---|---|
| 100 kV | 1.19 | $37.10^{-3}$ | 27 | 0.548 |
| 500 kV | 1.98 | $14.10^{-3}$ | 70 | 0.863 |
| 1000 kV | 2.96 | $87.10^{-4}$ | 114 | 0;941 |
| 3000 kV | 6.87 | $36.10^{-4}$ | 278 | 0.989 |

On peut tout de suite remarquer que les longueurs d'ondes ont un rapport 10 entre 100 kilovolts et 3 millions de volts. Ainsi le rayon de la sphère d'Ewald ($k = \frac{1}{\lambda}$) sera dix fois plus grand à 3 millions qu'à 100 kilovolts.

Si à 100 kilovolts les corrections relativistes ne sont pas absolument indispensables, elles deviennent nécessaires à partir d'une tension accélératrice de 500 kilovolts où l'électron a une énergie cinétique comparable à son énergie au repos.

# CHAPITRE I - THEORIE DYNAMIQUE.

## I - Introduction

## II - Equatinn fondamentale de la théorie dynamique

1 - Equation de Klein-Gordon

2 - Solution générale de l'équation de Schrödinger

3 - Solution associée à un potentiel périodique

a) hypothèses

b) conséquences

c) solutions

4 - Condition aux limites.

## III - Théorie dynamique de la microscopie électronique

1 - Influence de la normale, par rapport au plan réflecteur

2 - Propagation des champs d'ondes

3 - Système de Howie et Whelan à N ondes

a) Traitement des défauts cristallins

b) Système de Howie et Whelan

## IV - Conclusion

## I - Introduction

L'image au point obtenue sur une plaque photographique représente la probabilité de passage des électrons en tout point de la face de sortie de l'échantillon. L'interprétation d'une telle image nécessite l'étude de la propagation des électrons de haute énergie ($\geq$ 100 Kv) dans la matière. Dans le cas des cristaux, qui nous intéresse dans la suite de ce travail, une méthode analogue à celle des électrons presque libres dans un potentiel périodique, permet de traiter ce problème. La solution de l'équation de Schrödinger à l'intérieur du cristal est constituée par une combinaison linéaire de N ondes planes indépendantes. On parle ainsi de théorie à N ondes.

Pour des tensions accélératrices de l'électron de l'ordre de 100 Kv, il est possible de se placer dans des cas particuliers tels qu'une ou deux de ces ondes seulement soient fortement excitées. En négligeant toutes les ondes sauf une, l'explication des contrastes devient particulièrement simple (cas cinématique).

L'utilisation d'une théorie à deux ondes ne pose pas encore de grand problème dans la mesure où il n'y a entre les deux ondes qu'un seul terme de couplage complexe. Dans ce cas, la partie imaginaire qui rend théoriquement compte du phénomène d'absorption est classiquement prise au dixième de la partie réelle.

Lorsque la tension augmente, l'approximation qui consistait à négliger (N - 2) ondes devient mauvaise car plusieurs d'entre elles prennent des valeurs importantes. Il faut donc considérer dans la solution de l'équation de Schrödinger un nombre d'ondes supérieur.

L'étude des contrastes devient alors plus complexe. Les termes de couplages entre les différentes ondes, qui ne sont pas égaux entre eux, doivent être déterminés. Les calculs de contraste qui peuvent déjà nécessiter un matériel informatique important dans une théorie à deux ondes ne peuvent plus être résolus "à la main" dès que $\geq$ N>2 , sauf dans quelques cas bien particuliers où les solutions

restent simples.

Nous allons dans ce chapitre réintroduire la théorie dynamique en insistant sur les hypothèses et les approximations qui permettent de bonnes simplifications.

Nous considérons un faisceau d'électrons monocinétique de haute énergie (>100 Kv), d'ouverture idéalement nulle. En mécanique quantique, on associe aux électrons dans le vide une onde plane définie par :

$$\psi_o = e^{i \vec{K}_o \vec{r}}$$

$$|\vec{K}_o| = \frac{2\pi}{\lambda}$$

où $\lambda$ est la longueur d'onde de l'électron.

avec $$K_o^2 = \frac{1}{\hbar^2 c^2} (E^2 - m_o^2 c^4)$$

ou $E$ est l'énergie totale de l'électron,
$m_o$ est sa masse au repos,
$\hbar$ est la constante de Planck,
$c$ est la vitesse de la lumière.

Cette onde plane associée à l'électron est perturbée quand elle pénètre dans l'échantillon. C'est la connaissance des fonctions d'ondes associées aux électrons dans l'échantillon que nous nous proposons d'étudier.

## II EQUATION FONDAMENTALE DE LA THEORIE DYNAMIQUE

### 1) EQUATION DE KLEIN-GORDON

Les électrons accélérés sous des tensions supérieures à quelques centaines de kilovolts sont essentiellement relativistes. L'équation de Schrödinger ne nous permet théoriquement pas de traiter leur propagation dans les solides. Comme Schrödinger l'avait remarqué dans son papier original [11], il est nécessaire de faire une correction relativiste. C'est l'équation de Klein-Gordon construite à partir de l'Hamiltonien relativiste que l'on utilise pour résoudre ce problème.

$$E = -V+\sqrt{p^2c^2+m_o^2c^4} \qquad (1)$$

où E est l'énergie totale de l'électron incident,
V est l'énergie potentielle d'interaction électron-matière,
p est la quantité de mouvement de l'électron.

L'équation de Klein-Gordon ne considère pas les effets de spin des électrons. Nous justifions ce point en remarquant que les effets de spin sur les électrons de très haute énergie seront une perturbation faible devant celle apportée par l'interaction coulombienne [12].

Dans le traitement de l'interaction des électrons avec les solides, le potentiel est indépendant du temps. L'opération de correspondance s'effectue :

$$\vec{p} = i\hbar\vec{\nabla}$$

dans la relation (1) élevée au carré :

$$(E^2+2EV+V^2)\psi = -\hbar^2c^2\Delta\psi+m_o^2c^4\psi$$

En microscopie électronique le potentiel scalaire de l'ordre de quelque dizaine de volt est toujours très petit devant l'énergie des électrons incidents (≥100 KeV). On peut donc négliger le terme du second ordre en $V^2$. L'équation de Klein-Gordon est alors très analogue à l'équation de Schrödinger dans laquelle on aurait utilisé la masse relativiste et la définition relativiste du vecteur d'onde

Dans le vide :

$$E = mc^2 \quad , \quad p = \hbar K_o$$

$$\hbar^2 K_o^2 c^2 = E^2 - m_o^2 c^4 \qquad (2)$$

l'équation de Klein-Gordon s'écrit dans le cristal :

$$\hbar^2 K_o^2 c^2 \psi = (-2mc^2 V(r) - \hbar^2 c^2 \Delta)\psi$$

$$(K_o^2 + \Delta)\psi = -\frac{2m}{\hbar^2} V(r)\, \psi \qquad (3)$$

V (r) est ici essentiellement positif.

Nous retrouvons ici l'équation de Schrödinger modifiée où la masse de l'électron est la masse relativiste. Ce calcul avait été justifié par Fujiwara[12,14], Bethe [13], Howie [12], Terakura, Ohtsuki et Yanagawa [15].

## 2 - SOLUTION DE L'EQUATION DE SCHRODINGER

Les études faites sur les électrons dans les solides sont menées de façon très différentes pour chaque gamme d'énergie. Nous ne citerons que les cas des électrons liés par opposition aux électrons presque libres qui, seuls, nous intéressent ici.

Les potentiels cristallins mis en jeu ont des composantes de Fourier toujours de l'ordre ou inférieures à une dizaine de volts. Comme nous l'avons déjà remarqué, ils sont très faibles comparés aux tensions accélératrices utilisées en microscopie électronique (100 kV à 3000 kV).

Nous recherchons dans le cristal des solutions sous la forme d'une somme d'onde plane :

$$\psi(r) = \int_k c_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}\vec{r}}\, d_3 k$$

Dans tout ce chapitre, nous ne considérerons que des électrons diffusés élastiquement : c'est-à-dire ceux qui n'ont pas perdu d'énergie par création ou excitation de particules ($|\vec{K}'| = |\vec{K}_o|$). Le potentiel d'interaction électron incident cristal peut être exprimé en fonction d'une intégrale de Fourier :

$$V(\vec{r}) = \int_k V_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}\vec{r}}\, d_3 k$$

avec $$V_{\vec{K}} = \int_{\Omega} V(r) \; e^{i\vec{k}\vec{r}} \, d_3 r$$

où $\Omega$ est le volume dans lequel $V(\vec{r})$ est effectif. L'équation (3) s'écrit en remplaçant $V(\vec{r})$ et $\psi$ par leurs transformées de Fourier.

$$(K_o^2 + \Delta) \int_{\vec{k}} c_{\vec{k}} e^{i\vec{k}.\vec{r}} \, d_3 k = - \frac{2m}{\hbar^2} \int_{k'} V_{\vec{k}'} e^{i\vec{k}'\vec{r}} d_3 k' \int_{k''} c_{k''} e^{i\vec{k}''\vec{r}} d_3 k''$$

En développant le Laplacien on obtient :

$$\int_k (K_o^2 - k^2) c_k e^{i\vec{k}.\vec{r}} d_3 k + \frac{2m}{\hbar^2} \int_{k'} \int_{k''} V_{k'} c_{k''} \, e^{i(\vec{k}+\vec{k}'')\vec{r}} d_3 k' d_3 k'' = o$$

Cette relation peut s'écrire en regroupant les termes :

$$\int_k \left( (K_o^2 - k^2) \, c_{\vec{k}} + \frac{2m}{\hbar^2} \int_{k'} V_{\vec{k}-\vec{k}'} \, c_{k'} \, d_3 \vec{k}' \right) e^{i\vec{k}.\vec{r}} \, d_3 k = 0$$

Pour que cette relation soit partout vérifiée dans le volume $\Omega$ il faut et il suffit que les coefficients des exponentielles soient tous identiquement nuls :

$$(K_o^2 - k^2) \, c_{\vec{k}} + \frac{2m}{\hbar^2} \int_K V_{\vec{k}-\vec{k}'} \, c_{\vec{k}'} \, d_3 k' = o. \qquad (4)$$

Cette relation doit être vérifiée pour tous les vecteurs $\vec{k}$ considérés. De telles équations constituent un système d'équations linéaires associé au potentiel $V(\vec{r})$. L'étude générale d'un tel système est délicate car le spectre des valeurs $\vec{k}$ est continu. Nous n'utiliserons par la suite que des potentiels périodiques qui introduisent des solutions beaucoup plus simples. Il faut bien voir que nous cherchons pour une valeur fixe de l'énergie les vecteurs d'onde $\vec{k}$ solution de notre problème à l'inverse de ce qui est fait en théorie des bandes.

## 3 - SOLUTIONS ASSOCIEES A UN POTENTIEL PERIODIQUE

### a) - Hypothèses -

Nous disons que l'interaction électron-cristal peut être représentée par un potentiel qui a la période du réseau cristallin. Les électrons sont supposés ne créer aucun effet de charge induite et ne pas perturber le réseau.

$\alpha$) - la non perturbation du réseau par les électrons est implicitement comprise dans la conservation de leur énergie incidente.

$\beta$) - la première proposition peut être vérifiée dans la mesure où l'on peut dire qu'il n'y a dans l'échantillon qu'un seul électron dans une même colonne à analyser. En effet, pour un faisceau d'électrons de 100 kV et d'intensité 10 µA éclairant une plage de 100 $\mu^2$. La distance moyenne qui sépare deux électrons émis par le filament et arrivant sur une surface de un micron carré est de l'ordre de 300 microns. Elle est de l'ordre de 1000 fois les épaisseurs d'échantillons classiquement étudiés à ces tensions. La probabilité d'avoir deux électrons d'analyse dans un cylindre de cristal de 1 $\mu^2$ de base et 3000 Å d'épaisseur est donc négligeable. De plus l'effet de charge induite a un temps de vie de l'ordre de $10^{-15}$ secondes [16]. Les électrons voient donc toujours un cristal dans lequel les excitationsdues à un précédent électron sont complétement amorties.

$\gamma$) Effets de la Température [17]

La correction de Debye Waller permet de tenir compte de ces effets : en effet les potentiels d'interaction électron cristal sont déterminés par les méthodes de calculs classiques à 0 Kelvin. Dans les expériences que nous avons effectuées, le cristal est à la température ambiante et les atomes vibrent autour de leurs positions d'équilibre . Les électrons incidents voient un potentiel moyen. La correction de Debye Waller permet de rendre compte de cet effet :

$$V_g(T) = V_g(o) \quad \exp(-M_g) \qquad \text{avec} \quad M_g = 2\pi g^2 \overline{u^2}$$

où $\bar{u}^2$ est la valeur quadratique moyenne de l'amplitude de vibration d'un atome du cristal autour de sa position d'équilibre.
$V_g(o)$ et $V_g(T)$ sont les composantes de Fourier du potentiel d'interaction électron-cristal aux températures OK et T .
g est un vecteur du réseau réciproque.

b ) - Conséquences -

Le potentiel d'interaction électron cristal est périodique ; il est donc développable en série de Fourier et l'intégrale de Fourier se réduit à une somme discrète de termes à condition que le volume d'intégration soit suffisant :

$$V(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} V_{\vec{g}} e^{i\vec{g}.\vec{r}}$$

$\vec{g}$ est un vecteur du réseau réciproque associé au cristal considéré. La relation (4) va s'écrire en posant :

$$\vec{k}_o - \vec{k}' = \vec{g}$$

$$(K_o^2 - k^2)\, c_{\vec{k}} + \frac{2m}{\hbar^2} \sum_{\vec{g}} V_{-\vec{g}}\, c_{\vec{k}+\vec{g}} = 0. \qquad (5)$$

Donc si V(r) a pour transformée de Fourier une somme discrète de termes, les coefficients des exponentielles $c_{\vec{k}+\vec{g}}$ constituent aussi une série discrète de termes.
Nous n'avons pas fait d'hypothèse sur $\vec{k}$. Il est donc possible d'écrire :

$$\vec{k} \to \vec{k} + \vec{g}$$

La relation précédente s'écrit alors :

$$(K_o^2 - (\vec{k}+\vec{g})^2)\, c_{\vec{k}+\vec{g}} + \frac{2m}{\hbar^2} \sum_{\vec{g}'} V_{-\vec{g}'}\, c_{\vec{k}+\vec{g}+\vec{g}'} = 0. \qquad (6)$$

Cette relation est construite pour tous les vecteurs $\vec{g}$ du réseau réciproque. Elle constitue, sommée sur $\vec{g}$, l'équation fondamentale de notre problème dans la formulation du système d'équation linéaire à N dimensions. N est le nombre de vecteurs $\vec{g}$ intervenant dans les calculs. Ce nombre est théoriquement infini mais nous verrons plus loin, qu'au delà de 10 ondes la précision des calculs est en général suffisante pour des réflexions systématiques. Ce nombre dépend, en fait, du problème considéré.

Ce système de N équations à N inconnues ( $c_{\vec{k}+\vec{g}}$) a une solution non triviale si et seulement si le déterminant caractéristique de cette équation est nul. Nous voyons que seules les ondes de vecteurs $\vec{k}(i)$ qui satisfont à cette condition peuvent se propager dans le cristal. Ces vecteurs sont les valeurs propres du système que l'on vient d'établir. Les extrémités de ces vecteurs dans l'espace réciproque ont pour lieux géométriques d'une part, les noeuds du réseau réciproque et une surface dans cet espace appelé surface de dispersion. Une coupe associée à une rangée systématique 200 dans du cuivre en est donné sur la planche I pour plusieurs tensions.

Cette surface a une périodicité égale à celle du réseau réciproque ($\vec{g}$) et est symétrique par rapport à l'origine. La connaissance de la demi-zone de Brillouin $K_x = \{0, g/2\}$ suffit donc à construire toute la surface de dispersion suivant l'axe de la rangée systématique $\vec{g}$.

c) Solutions

La solution générale $\psi$ d'un tel système défini par les équations (6) peut se mettre naturellement sous deux formes.

α) Champs d'ondes (ondes de Bloch)

La solution générale s'écrit :

$$\psi(r) = \sum_i \alpha^{(i)} \psi_i(r)\, e^{i\vec{k}^{(i)}\vec{r}}$$

avec l'onde de Bloch :

$$\psi_i(r) = \sum_g c_g^{(i)}\, e^{i\vec{g}\vec{r}}$$

Les $\psi_i(r)$ sont les fonctions propres de l'équation fondamentale et ont pour valeurs propres associées $\vec{k}^{(i)}$. Les $c_g^{(i)}$ composantes du "champ d'ondes" i sont définies à une constante multiplicative près (i) que l'on appelle en général coefficient d'excitation de ce champ d'ondes. Les $\psi_i(r)$ étant fonctions propres de l'opérateur propagation dans le cristal seront indépendantes les unes des autres. Cette remarque sera importante pour l'étude de "l'absorption" des électrons par le cristal.

β) - ondes associées aux noeuds du réseau réciproque.

La solution générale peut s'écrire aussi sous la forme :

$$\psi(r) = \sum_g \phi_g\, e^{i\vec{g}\vec{r}} \qquad (8)$$

avec $$\phi_g = \sum_i \alpha^{(i)} c_g^{(i)}\, e^{i\vec{k}^{(i)}\vec{r}}$$

On parle alors d'ondes transmises $\phi_o$ ou diffractées dans la direction

$(\vec{k}+\vec{g})$, $\phi g$. Ces fonctions sont intéressantes parce qu'en microscopie électronique le produit $\phi_g \phi_g^*$ est directement donné par l'expérience. En effet, la sélection d'une tache $\vec{g}$ du réseau réciproque avec un diaphragme de contraste permet de former une image réelle que l'on appelle champ sombre g associé à la réflexion $\vec{g}$ ou champ clair s'il s'agit du faisceau direct. Cette image donne les variations d'intensité $\phi_g \phi_g^*$ sur cette face. Les fonctions $\phi_g$ sont donc directement liées à l'information obtenue sur les micrographies et l'importance de leur étude est alors évidente.

4 - CONDITIONS AUX LIMITES -

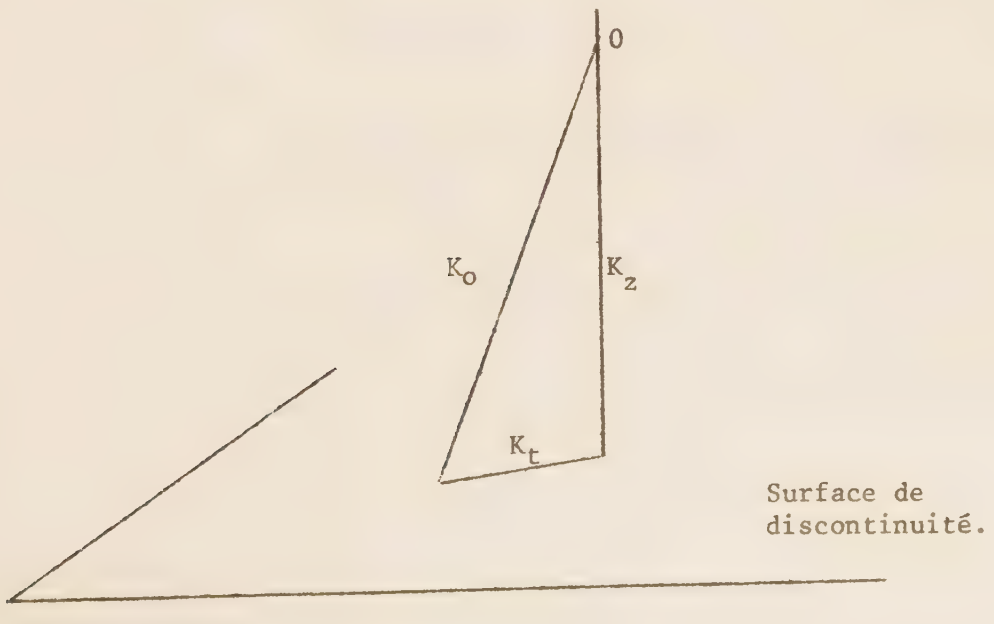
Connaissant la forme des solutions $\psi(r)$ de l'équation fondamentale associée aux électrons dans le cristal, les conditions aux limites permettent de préciser divers paramètres de notre étude :

Aux points de discontinuité du problème (surfaces libres, défauts), la solution $\psi(r)$ ainsi que son gradient doivent être continus.

La continuité du gradient est [17] bien vérifiée si l'on néglige les ondes réfléchies (entrée-sortie). Heidenreich[18] a montré qu'aux tensions habituelles de travail (> 100 kV) cette approximation est parfaitement valable. [19].

La solution s'écrit :

- dans le vide : $\psi_o = e^{i\vec{K}_o\vec{r}}$
- dans le cristal: $\psi(r) = \sum_{i\,\vec{g}} \alpha^{(i)} c_g^{(i)} e^{i(\vec{k}^{(i)}+\vec{g})\vec{r}}$



A la surface limite du cristal il faut avoir en tout point :

$$\psi_o(\vec{r}) = \psi(\vec{r})$$

Si l'origine du réseau direct est prise sur cette surface (fig.1) et que les composantes des $\vec{k}^i$ dans ce plan soient $\vec{k}_t^i$ , la condition s'écrira :

$$e^{i\vec{k}_t^{o}\vec{r}} = \sum_{i,g} \alpha^{(i)} c_g^{(i)} e^{i(\vec{k}_t^{(i)} + \vec{g})\vec{r}}$$

Pour que cette relation soit vérifiée en tout point de la face d'entrée, il faut que :

- a) la composante tangentielle $k_t$ soit conservée, $\vec{k}_t^{(i)} = \vec{K}_t$
- b) $\sum_i \alpha^{(i)} c_o^{(i)} = 1$
- c) $\sum_i \alpha^{(i)} c_g^{(i)} = 0$ pour tous les vecteurs $\vec{g}$ (9)

Les conditions (9-b) et (9-c) servent à déterminer les coefficients d'excitations $\alpha^{(i)}$ des champs d'ondes. La matrice des $\{c_g^i\}$ est unitaire à cause des conditions de normalisation.

$$\sum_{ij} c_g^{(i)} c_g^{(j)} = \delta_{ij}$$

$$\sum_{gh} c_g^{(i)} c_h^{(j)} = \delta_{gh} \qquad (10)$$

En utilisant cette propriété, les relations (9 - b) et (9 - c) peuvent s'écrire :

$$\{c_g^{(i)}\} \{\alpha^{(i)}\} = \begin{Bmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \end{Bmatrix}$$

Comme $\{c_g^{(i)}\}$ est une matrice unitaire nous avons :

$$\{C_g^{(i)}\} = \{c_g^{(i)}\}^{-1}$$

$$\{\alpha^{(i)}\} = \{c_g^{(i)}\} \begin{Bmatrix} 1 \\ 0 \\ \vdots \end{Bmatrix}$$

Il vient : $a'^{(i)} = c_o^i$

La condition (1) est importante pour le calcul. Elle impose théoriquement que les valeurs propres soient calculées suivant la normale à la surface d'entrée, c'est l'équivalent optique de la réfraction.

## III - THEORIE DYNAMIQUE DE LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A HAUTE TENSION

Nous allons établir dans ce paragraphe les équations qui permettent d'étudier effectivement les paramètres de la théorie dynamique et les contrastes en microscopie électronique. Le système d'équation séculaire est théoriquement suffisant pour traiter tous les problèmes de diffraction électronique par un cristal idéal. Nous garderons encore la notion de cristal idéal (les électrons ne subissent que des chocs élastiques) mais nous tiendrons compte de la valeur de l'énergie des électrons incidents. Aux très hautes tensions, les angles de diffraction sont très faibles :

$$\sin\theta \simeq \theta \simeq \frac{\lambda}{2d_{hkl}}$$

pour l'aluminium par exemple :

TABLEAU 2

| | 100 kV | 1000 kV | 3000 kV |
|---|---|---|---|
| θ 111 | 25' | 6' | 2' 30" |

A partir de cette remarque toute une série d'approximations permettent de rendre la résolution du problème abordable.

1) Influence de l'orientation de la normale, par rapport aux plans réflecteurs -

Cette remarque a pour but de montrer que dans le cas de réflexions systématiques, l'orientation de la normale à la surface libre par rapport aux plans réflecteurs n'a qu'un effet du second ordre, sur la détermination des valeurs propres et des vecteurs propres de l'équation séculaire.

D'après les conditions de continuité les valeurs propres doivent être calculées suivant la normale à la surface d'entrée. Le système d'équation séculaire n'est sensible qu'aux effets d'orientations $K_x$ , $K_y$ (ici $K_y=o$) et des conditions aux limites que par les termes diagonaux $K_o^2 - k_{ng}^{(i)2}$ . Sur la figure 2 nous représentons en CO le vecteur d'ondes transmis et CA la normale à la surface d'entrée de

L'échantillon qui fait un angle $\phi$ avec les plans de réflexion, $K_x$ est le paramètre d'orientation.

Calculons ces termes diagonaux en fonction de $K_x$ et $\phi$

$$K_o^2 - k_{ng}^{(i)2} = K_{zo}^2 + OA^2 \cos^i\phi - (k_{ng}^{(i')})_z^2 - (OA-ng)^2\cos^2\phi$$

$$(k_{ng}^{(i)})_z^2 = (k_{zo}^{(i)} + ng\ \sin\phi)^2$$

$$K_o^2 - k_{ng}^{(i)2} = K_{zo}^2 - (k_{zo}^{(i)} + ng\sin\phi)^2 + (OA^2 - (OA-ng)^2)\cos^2\phi$$

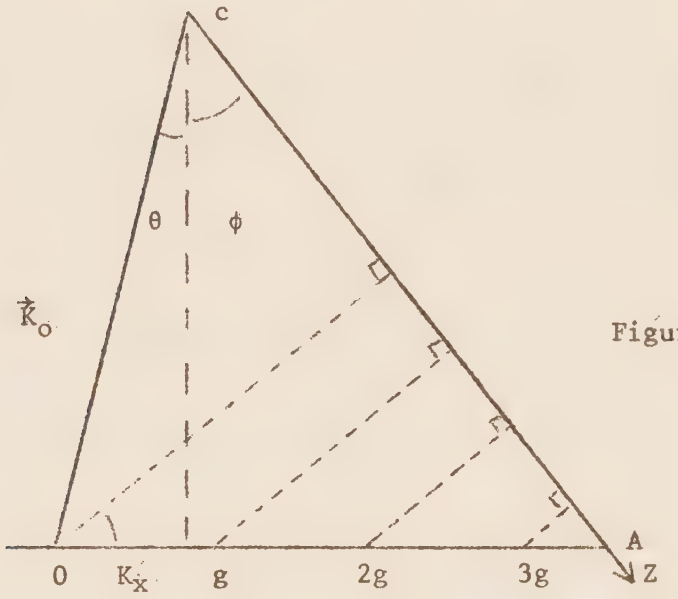



Figure 2.

Les valeurs propres sont définies par :

$$\Delta k^{(i)} = k_{zo}^{(i)} - K_{zo} \qquad K_{zo} = K_o \cos(\theta+\phi)$$

$$K_o^2 - k_{ng}^{(i)2} = -\Delta k^{(i)}(2K_o \cos(\theta+\phi) + ng\ \sin\phi) - n^2g^2 + 2ng\ (OA\cos^2\phi - K_o\cos(\theta+\phi)\ \sin\phi)$$

le coefficient de $\Delta k^{(i)}$ s'écrit :

$$-2K_o\cos\theta\left(\cos\phi - \frac{\sin\theta\ \sin\phi}{\cos\theta} + \frac{ng\ \sin\phi}{2K_o\ \cos\theta}\right)$$

$\sin\theta$ est de l'ordre de $g/2K_o \ll 1$, donc la parenthèse sera égale à 1 au second ordre près en $\phi$

Le second terme s'écrit en explicitant $K_{zo}$ et OA :

$$OA = K_x + K_o \cos\theta \operatorname{tg}\phi$$

$$- n^2g^2 + 2ng\,(K_x + K_o \cos\theta \operatorname{tg}\phi)\cos^2\phi - K_o \cos(\theta+\phi)\sin\phi) =$$

$$- n^2g^2 + 2ng\,K_x \cos^2\phi + 2ng\,K_o \sin\theta \sin^2\phi$$

d'après la figure (2) : $\sin\theta = \dfrac{K_x}{K_o}$ et le terme d'orientation s'écrit quel que soit la normale à la face d'entrée :

$$- n^2g^2 + 2ng\,K_x$$

Nous voyons donc que si l'angle de la normale avec les plans réflecteurs n'est pas trop important, la définition des éléments diagonaux sera indépendante de l'angle $\phi$ au second ordre près. Ceci est en général valable pour les angles que l'on utilise classiquement en microscopie électronique qui sont toujours de l'ordre du degré.

Il nous sera en général possible de considérer que la normale à la face d'entrée est parallèle aux plans réflecteurs.

2) - Propagation des champs d'ondes -

Les champs d'ondes s'écrivent de façon générale :

$$\psi_i(z) = \{ \sum_g c_g^{(i)} \; e^{igx} \} \; e^{i\vec{k}^{(i)}\vec{r}}$$

$\vec{g}$ représente ici les noeuds d'une rangée systématique dans le réseau réciproque. x est la direction normale aux plans définis par $\vec{g}$. Leurs intensités :

$$\psi_i\psi_i^* = \sum_g \sum_h c_g^{(i)} \; c_h^{(i)} \; e^{\,i(g-h)x} \qquad (11)$$

est indépendante de la valeur propre $k^{(i)}$ et de la direction z . Elle est stationnaire dans la direction x . Ceci s'applique aussi au cas des réflexions simultanées de la même façon et l'intensité est alors stationnaire dans le plan normal aux plans de réflexions (Fig. 3)

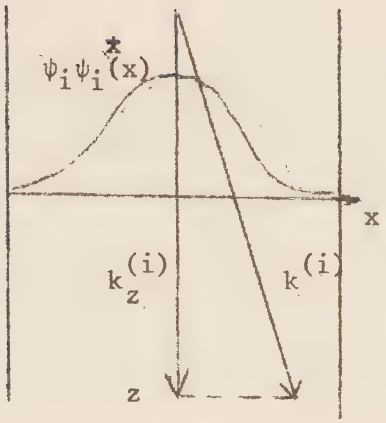



Figure 3.

La propagation efficace des champs d'ondes se fait donc uniquement dans la direction perpendiculaire à x c'est-à-dire suivant l'axe z parallèle au plan réflecteur.

Nous justifions ainsi l'utilisation de l'axe z parallèle aux plans réflecteurs comme axe de propagation des champs d'ondes dans le cristal.

En fait en ne considérant que $k_z^{(i)}$ comme composante des vecteurs de propagation des champs d'ondes, nous faisons l'approximation de la colonne non sur $\psi_i \psi_i^*(x)$ mais sur $\psi_i$ dont on ne considère que la direction de propagation $k_z^i$

Cette simplification est fondamentale dans les calculs de contrastes. Les résultats obtenus dans le cas général ou dans le cas où cette hypothèse est faite, sont souvent comparables surtout à haute tension[20,21]. La programmation d'un tel problème est alors plus simple et les temps de calculs nettement moins grands.

## 3 - SYSTEME D'EQUATIONS DE HOWIE ET WHELAN à N ONDES

L'étude des solutions de l'équation de Schrödinger sous forme des champs d'ondes est très utile pour des cristaux parfaits. Dans ce cas, en effet, les champs d'ondes fonctions propres de l'opérateur propagation dans le cristal ne se recombinent que sur la surface de sortie. Par contre, en présence d'un défaut de structure qui déforme le cristal, ces champs d'ondes subissent des transitions qui sont difficilement calculables par cette approche.
Howie et Whelan ont proposé une formulation en deux ondes généralisée à N ondes (22;23,24,25) qui permet de calculer les intensités transmises et diffractées par un cristal contenant des défauts.

### a) - Traitement des défauts cristallins -

La présence d'un défaut de structure dans un échantillon rend le

problème de la détermination du potentiel d'interaction électron cristal très délicat. Hirsch, Howie et Whelan ont proposé un modèle simple qui permet de donner une forme analytique R $(\vec{r})$ aux déformations introduites par un défaut. Loin du défaut , cette fonction se calcule à l'aide de la théorie de l'élasticité linéaire des milieux continus. Ceci est une bonne approximation dès que R $(\vec{r})$ varie lentement par rapport aux dimensions de la maille, c'est-à-dire dans les régions de faibles contraintes.

Ce traitement sera par contre, difficile à appliquer dans les problèmes de haute résolution, l'élasticité des milieux continus n'étant alors pas applicable (défaut d'extension égale à quelques distances interatomiques.)

Un volume élémentaire se trouvant à la position $\vec{r}$ dans le cristal parfait est déplacé par la déformation en $\vec{r} + \vec{R}(\vec{r})$. (Fig. 4)

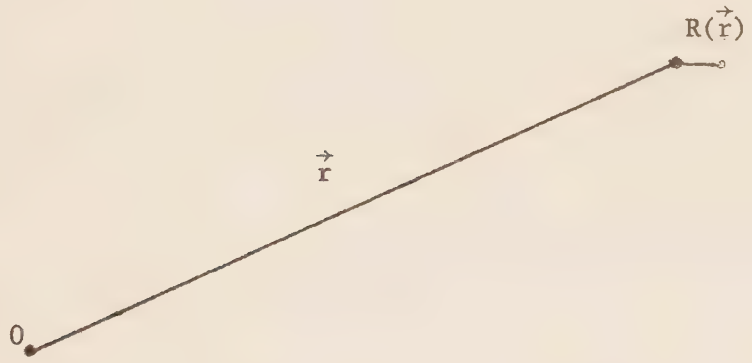



Figure 4.

Hirsch, Howie et Whelan ont proposé comme approximation que le potentiel dans le cristal imparfait en $(\vec{r} + \vec{R})$ soit le même que dans le cristal parfait en position $\vec{r}$.

Donc si $V'(\vec{r})$ est le potentiel du cristal imparfait

$$V'(\vec{r} + \vec{R}) = V(\vec{r}) \quad \text{ou} \quad V'(\vec{r}) = V(\vec{r} - \vec{R})$$

le développement de Fourier du potentiel s'écrit alors :

$$V'(\vec{r}) = \sum_{g} V_g \exp i\, \vec{g}\,(\vec{r} - \vec{R})$$

par rapport au cristal parfait Vg est changé en $V_g \exp - i\,(\vec{g}.\vec{R})$

b) - Système de Howie et Whelan -

L'équation de Schrödinger s'écrit quand on présente la solution sous la forme (8) :

$$-\Delta\phi_g e^{i(K_o+g)r} + \sum_\tau U_{g-\tau}\,\phi_\tau\, e^{i(g-\tau)R}\, e^{i(K_o+g)r} = K_o^2\,\phi_g e^{i(K_o+g)r}$$

avec

$$U_g = \frac{2m}{\hbar^2} V_g \qquad (12)$$

Développons le Laplacien :

$$-\Delta\phi_g\, e^{i(K_o+g)r} = -\left(-(K_o+g)^2\phi_g + 2i\,(\vec{K}_o+\vec{g})\vec{\nabla}\phi_g + \Delta\phi_g\right)e^{i(K_o+g)r}$$

D'après les résultats déduits de la théorie dynamique $\vec{\nabla}\phi_g$ est une fonction qui varie lentement par rapport aux distances réticulaires. Donc $\Delta\phi_g$ sera très petit devant $\vec{K}_o.\vec{\nabla}\phi_g$ et par là négligeable.

L'équation de Schrödinger devient alors :

$$(13)\qquad (K_o^2-(K_o+g)^2)\phi_g + 2i\,(\vec{K}_o+\vec{g})\,\vec{\nabla}\phi_g = \sum_\tau U_{g-\tau}\, e^{i(g-\tau)\,R(r)}\,\phi_\tau$$

En général, l'utilisation de l'approximation de la colonne permet une simplification des calculs qui ne modifie généralement que peu les résultats des calculs(20,21).Elle permet de poser :

$$(\vec{K}_o+\vec{g})\;\vec{\nabla}\phi_g = K_o\frac{d\phi_g}{dz}$$

La direction z est celle de la propagation moyenne des électrons dans l'échantillon.

Enfin le changement de fonction

$$\phi_g \rightarrow \phi_g\, e^{i\vec{\tau}.\vec{R}(r)}$$

qui ne change pas les intensités étudiées permet de transformer la relation (13) :

$$\frac{d\phi_g}{dz} = i\left(s_g + \vec{g}.\frac{\vec{dR}(r)}{dz}\right)\phi_g + \sum_\tau i\,\frac{U_{g-\tau}}{2K_o}\,\phi_\tau \qquad (14)$$

avec

$$s_g = (K_o^2 - (K_o+g)^2)/2K_o$$

et $\frac{dR(r)}{dz}$ est la dérivée du champ de déformation par rapport à z.

A N ondes il y a N relations de ce type qui constituent le système de Howie et Whelan généralisé. Il permet de faire l'étude des intensités transmises et diffractées à la sortie de l'échantillon-cristal parfait ou contenant un défaut. Cette formulation a été récemment utilisée par C. Mory pour l'étude des défauts d'empilement en haute tension (26). C'est également à l'aide de cette formulation que nous avons obtenu les simulations de contrastes aux tensions critiques.

## IV - Conclusion -

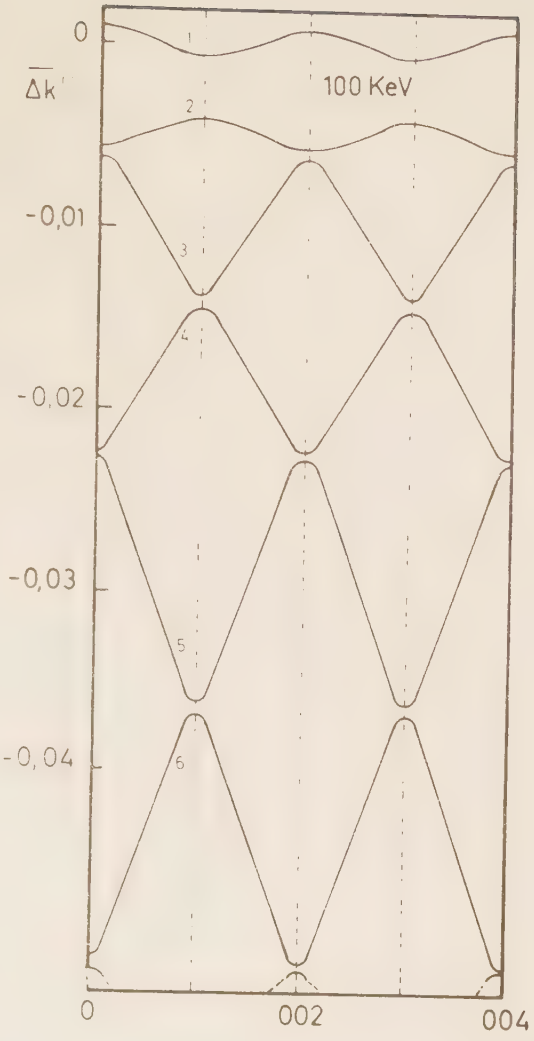
Nous avons rappelé dans ce chapitre que l'étude de l'équation de Schrödinger associée à des électrons se propageant dans un cristal pouvait être grandement simplifiée par des approximations classiques.

Nous avons aussi remarqué que la solution de ce problème pouvait être présentée sous deux formes différentes également intéressantes :

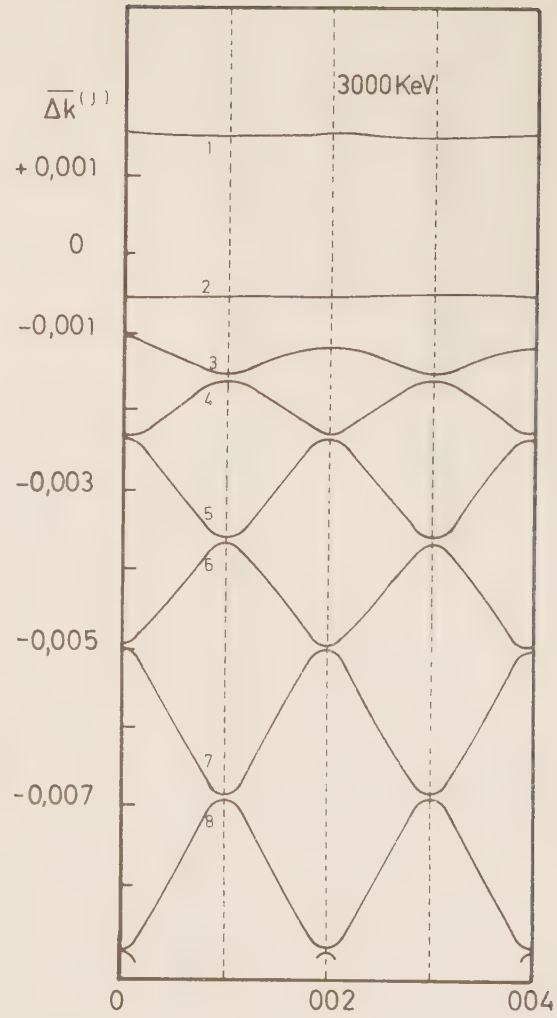
- Les champs d'ondes sont les fonctions propres de l'opérateur propagation des électrons dans le cristal. Ils permettent d'étudier commodément les effets de tensions critiques et la pénétration.

- Les ondes $\phi_g$ transmises (g =o) ou diffractées dans la direction $(k^{(i)}_{+g})$ sont associées au noeud g du réseau réciproque. Elles servent surtout à l'étude des contrastes car comme nous l'avons déjà dit une micrographie donne dans les bonnes conditions d'utilisation la variation de $\phi_g \, \phi_g^*$ sur la face de sortie de l'échantillon.

PLANCHE I


0
$\overline{\Delta k}^{(j)}$
100 KeV
-0,01
-0,02
-0,03
-0,04
1
2
3
4
5
6
0
002
004

0
$\overline{\Delta k}^{(j)}$
1000 KeV
-0,005
-0,0010
-0,015
-0,020
1
2
3
4
5
6
7
8
0
002
004


$\overline{\Delta k}^{(j)}$
3000 KeV
+ 0,001
0
-0,001
-0,003
-0,005
-0,007
1
2
3
4
5
6
7
8
0
002
004

## CHAPITRE II - TENSION CRITIQUE

I - Introduction

II - Etude théorique de la tension critique

1 - Cas de la réflexion du second ordre en position de Bragg

a) - cas général à 3 ondes

b) - effet de la tension critique sur les contrastes

c) - relation définissant la tension critique

d) - correction de Bethe

e) - généralisation à N ondes.

2 - Cas des autres ordres de réflexion

a) - premier ordre

b) - troisième ordre

c) - position symétrique (ordre 0)

3 - Conclusion

III - Résultats expérimentaux

1 - Méthodes d'observations

a) - lignes de Kikuchi

b) - contour d'extinction

c) - justification de la méthode de l'échantillon en forme de coin courbé.

2 - Simulation

a) - nombre d'ondes

b) - facteur de diffusion

c) - absorption

d) - orientations limites

e) - observations

f) - remarques

3 - Conditions d'observations

a) - température de l'échantillon

b) - degré de pureté de l'échantillon

4 - Résultats expérimentaux

IV - Utilisation de la tension critique

1 - Etude des facteurs de diffusion

a) - détermination théorique des tensions critiques

α - nombre d'ondes

β - influence de la température

γ - absorption

δ - influence des réflexions simultanées.

b) - utilisation des tensions critiques pour la détermination des facteurs de diffusion

c) - correction des facteurs de diffusion

2 - contraste des défauts en tension critique

V - Conclusion

## I - Introduction

Le phénomène de tension critique dans le cas de réflexion systématique d'abord mis en évidence par Nagata et Fukuhara (1967 , 9) et Uyëda (1968 , 10) a été étudié ensuite par Watanabe et Coll (1968 , 27, 28), Metherell et Fisher (1969 , 29) A.Mazel (1969 , 30), Fisher et Coll. (1970 , 31), Lally &Coll (32) et Bell (33) . Plus récemment, nous avons présenté les résultats de l'étude exposée ci-dessous (34). Nous allons commencer à rappeler l'essentiel du phénomène de tension critique que nous avons pu étudier jusqu'à une tension de 3,1 MV.

La surface de dispersion associée aux électrons se propageant dans un cristal est, en première approximation, comme nous l'avons vu plus haut, constituée par des sphères centrées sur les noeuds du réseau réciproque de rayon $K_o$, $K_g$, etc... ($|\vec{K}_o| = |\vec{K}_g|$) , $K_o$ est le vecteur d'onde de l'électron dans le vide. Plus exactement, la théorie des électrons presque libres dans un potentiel périodique prévoit une levée de dégénérescence aux limites de zones de Brillouin constituées par les plans contenant les intersections des sphères définies auparavant. La surface de dispersion est alors constituée d'hyperboloïdes. Cependant pour les tensions accélératrices des électrons - dites critiques- deux nappes de la surface de dispersion peuvent être en contact. Il y a dégénérescence.

Les conséquences de ce phénomène peuvent être importantes dans les études de contrastes.

Dans une première partie nous allons étudier la tension critique associée à une réflexion du second ordre en position de Bragg puis après avoir regardé le cas des autres réflexions nous donnerons nos résultats expérimentaux et des applications possibles à cet effet.

## II - Etude théorique de la tension critique

### 1 - CAS DE LA REFLEXION DU SECOND ORDRE EN POSITION DE BRAGG

Le cas est particulièrement intéressant parce que les effets de constraste qu'il introduit dans la tension critique sont importants. La mise en évidence de la tension critique est assez simple dans ces conditions et son utilisation est possible dans des études de contraste.

#### a) - Cas général à 3 ondes.

Nous allons utiliser une théorie à trois ondes pour étudier le phénomène. La justification de cette approximation peut être donnée en comprenant le rôle des différentes ondes les unes par rapport aux autres. Fig. 5 -

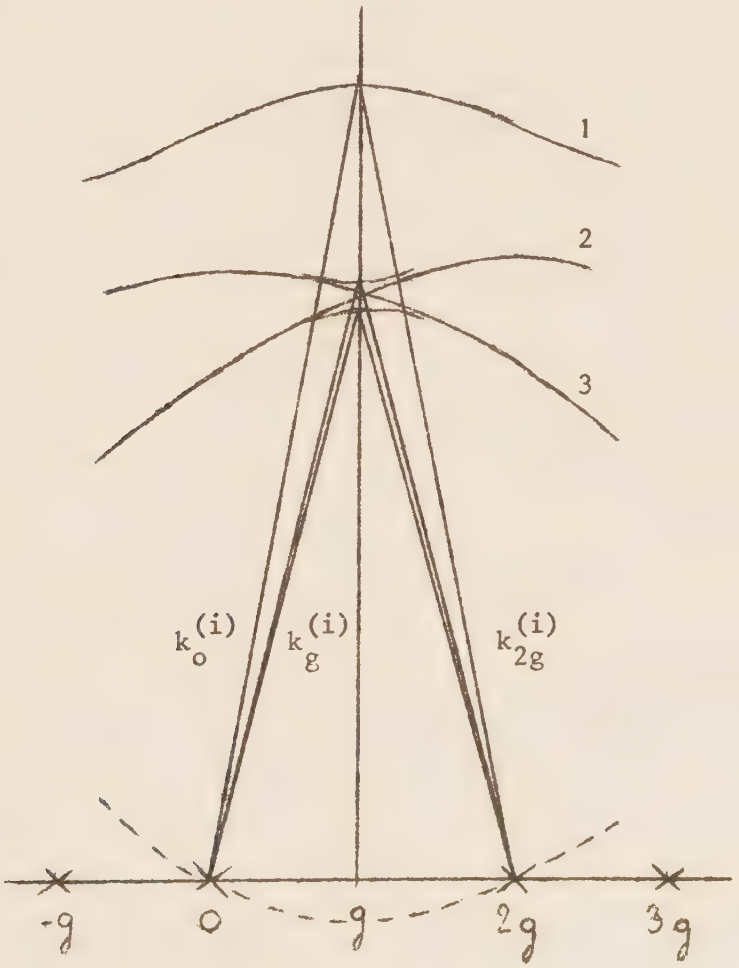



Figure 5.

L'onde transmise et l'onde en réflexion de Bragg du second ordre ($2\vec{g}$) sont les ondes principales.

L'onde g qui se trouve à l'intérieur de la sphère d'Ewald a un écart à l'angle de Bragg négatif ($\Delta\theta<0$) par rapport à l'onde incidente. En théorie à deux ondes avec absorption l'onde incidente qui lui est associée est très mal transmise dans le cristal à l'inverse de ce qui se passe si l'écart à l'angle de Bragg est positif ($\Delta\theta>0$ ). L'effet de cette onde est donc certainement important dans l'étude des contrastes associés à une telle orientation ($\Delta\theta<0$ )

L'onde $(3\vec{g})$ extérieure à la sphère d'Ewald a, ainsi, un comportement cinématique classique qui ne modifiera pas fondamentalement l'onde incidente. Ce raisonnement qualitatif nous permet de montrer que les noeuds du réseau réciproque intérieurs à la sphère d'Ewald ont une influence beaucoup plus grande sur les contrastes que ceux qui lui sont extérieurs.

Nous considérons donc les trois noeuds du réseau réciproque $0, \vec{g}, \vec{2}g$. L'équation fondamentale a alors pour solution :

$$\psi(r) = \sum_{i=1,2,3} \sum_{\substack{\tau=0 \\ g \\ 2g}} \alpha^{(i)} c_\tau^{(i)} e^{i(\vec{k}^{(i)}+\vec{\tau})\vec{r}}$$

le système ( 6 ) s'écrit dans ce cas :

$$(15) \qquad \begin{vmatrix} -2K_o\Delta k^{(i)} & U_g & U_{2g} \\ U_g & -2K_o\Delta k^{(i)}+g^2 & U_g \\ U_{2g} & U_g & -2K_o\Delta k^{(i)} \end{vmatrix} \begin{vmatrix} c_o^{(i)} \\ c_g^{(i)} \\ c_{2g}^{(i)} \end{vmatrix} = 0.$$

les valeurs propres du déterminant correspondant à cette équation matricielle sont :

$$(16) \qquad \begin{aligned} \Delta k^{(1)} &= \frac{1}{4K_o}\left(g^2+U_{2g}+\sqrt{(g^2-U_{2g})^2+8\,U_g^2}\right) \\ \Delta k^{(2)} &= \frac{1}{4K_o}\left(g^2+U_{2g}-\sqrt{(g^2-U_{2g})^2+8\,U_g^2}\right) \\ \Delta k^{(3)} &= -\frac{U_{2g}}{2K_o} \end{aligned}$$

Les composantes des champs d'ondes - vecteurs propres du système -

s'écrivent normalisées :

$$(c_o^{(1)})^2 = \frac{2K_o\Delta k^{(1)} - g^2}{4K_o(\Delta k^{(1)} - \Delta k^{(2)})}, \quad c_o^{(1)} = c_{2g}^{(1)}, c_g^{(1)} = \frac{2U_g}{2K_o\Delta k^{(1)} - g^2} c_o^{(1)}$$

$$(17) \quad (c_o^{(2)})^2 = \frac{2K_o\Delta k^{(2)} - g^2}{4K_o(\Delta k^{(2)} - \Delta k^{(1)})}, \quad c_o^{(2)} = c_{2g}^{(2)}, c_g^{(2)} = \frac{2U_g}{2K_o\Delta k^{(2)} - g^2} c_o^{(2)}$$

$$c_o^{(3)} = +\frac{1}{\sqrt{2}}, \quad c_o^{(3)} = -c_{2g}^{(3)}, c_g^{(3)} = 0$$

Les coefficients $\alpha^{(i)}$ des champs d'ondes sont déterminés par les conditions initiales (voir la relation 9). Rappelons que la matrice des vecteurs propres étant unitaire , les coefficients d'excitation sont égaux aux composantes $c_o^{(i)}$ des champs d'ondes.

Dans ce cas, la solution associée à la réflexion du second ordre en position de Bragg s'écrit sous forme d'ondes planes transmises et diffractées :

$$\psi(r) = \phi_o(r) + \phi_g(r) + \phi_{2g}(r)$$

$$\phi_o(z) = \frac{1}{2}\left( e^{i\Delta k^{(3)}z} + e^{i\Delta k^{(2)}z}, + \frac{2K_o\Delta k^{(1)} - g^2}{4K_o(\Delta k^{(1)} - \Delta k^{(2)})} (e^{i\Delta k^{(1)}z} - e^{i\Delta k^{(2)}z}) \right.$$

$$(18) \quad \phi_{2g}(z) = \frac{1}{2}(e^{i\Delta k^{(3)}z} - e^{i\Delta k^{(2)}z}) + \text{" " " " " "}$$

$$\phi_g(z) = \frac{U_g}{2K_o(\Delta k^{(1)} - \Delta k^{(2)})} (e^{i\Delta k^{(2)}z} - e^{i\Delta k^{(1)}z})$$

Ces relations ont été écrites pour une tension quelconque. Les solutions mises sous cette forme permettent de voir qu'il y a deux systèmes de battements :

- le premier $(\Delta k^{(2)} - \Delta k^{(3)})$ tient compte des intéractions dynamiques à période longue,

- le second ($\Delta k^{(1)} - \Delta k^{(3)}$) représente l'interaction cinématique.

Ces deux battements sont communs aux trois ondes - ($\Delta k^{(2)} - \Delta k^{(3)}$) à une amplitude très supérieure à l'amplitude cinématique ($\Delta k^{(1)} - \Delta k^{(2)}$).

b) Effet de la tension critique sur les contrastes

A cette tension les deux racines $\Delta k^{(2)}$ et $\Delta k^{(3)}$ sont égales. A la limite, les solutions sont toujours valables et permettent de prévoir les effets de contraste existant aux tensions critiques.

α) - L'intensité diffractée suivant g n'est pas modifiée. Elle ne dépend en effet que des champs d'ondes (1) et (2) ou (3) interagissant de façon cinématique. La composante dans le troisième champ d'onde est nulle.

β) - Le faisceau transmis a une variation qui devient très faible et centrée autour de l'intensité unité, au moins dans notre raisonnement sans absorption. Seul le battement cinématique de faible amplitude contribue alors au contraste. Le contour d'extinction du second ordre disparaît en champ clair. Ce critère de mise en évidence d'une tension critique n'est pas utilisé car la mesure du maximum d'intensité est une mesure délicate et finalement peu précise.

γ) - Le faisceau diffracté associé à la réflexion 2g voit son intensité passer par un minimum. Les champs d'ondes (2) et (3) restent en opposition de phase dans le cristal. Il n'y a pas d'interférence constructive. De plus, cette intensité possède alors la période de battement cinématique. Cet effet de contraste est observable expérimentalement et nous l'avons utilisé pour déterminer la tension critique.

c) - Passage de la tension critique

Dans le raisonnement à trois ondes développé au début du chapitre nous avons pu remarquer que le classement par valeur décroissante des valeurs propres changeait au passage des tensions critiques en position symétrique (ou de Bragg d'ordre pair).

On a ainsi :

$$\Delta k^{(3)} \ (\Delta k^{(2)}) = -\frac{U_{2g}}{2K_o}$$

si $V<V_c$ $(V>V_c)$

$$\Delta k^{(2)} \ (\Delta k^{(3)}) = \frac{1}{4\,k_o}\left( g^2 + U_{2g} - \sqrt{(g^2-U_{2g})^2+8U_g^2} \right)$$

Les propriétés des champs d'ondes (i) sont associées à la relation de définition de la valeur propre $\Delta k^{(i)}$. Au passage de la tension critique les champs d'ondes (2) et (3) échangent donc leurs propriétés pour l'orientation symétrique. Cet échange est lié aux notations car les variations des différents paramètres $c_o^{(i)}$ et $\mu^{(i)}$ sont continues en fonction de l'énergie , (Planche XX, c).

Les calculs que nous avons effectués dans du cuivre pour une réflexion (200) en position symétrique sont résumés sur la planche II. Il faut remarquer :

Au-dessous de la tension critique le minimum de $c_o^{(2)}$ et le maximum de $c_o^{(3)}$ tendent vers une même valeur qui se rapproche de la position symétrique quand la tension approche de sa valeur critique (Planche II a,b).

A la tension critique les champs d'ondes (2) et (3) ont même caractéristique pour une désorientation infinitésimale.

$$c_o^{(2)}(\varepsilon) = c_o^{(3)}(\varepsilon)$$

Il existe donc pour les coefficients d'excitations une discontinuité liée à l'orientation (Planche II, c).

Au-dessus de la tension critique, le caractère (2) du champ d'onde (3)s'étend sur des orientations de plus en plus grandes quand la tension augmente, et réciproquement pour le champ d'onde (2). On peut noter que la limite d'orientation où les champs d'ondes changent de type est définie par :

$$c_o^{(2)}(k_x(E)) = c_o^{(3)}(k_x(E))$$

Pour $k_x < k_x(E)$ les caractères des champs d'ondes seront inversés par rapport à ceux obtenus pour $k_x > k_x(E)$.

d) - Relation définissant la tension critique

Nous avons défini la tension critique comme la tension pour laquelle deux valeurs propres étaient confondues. En trois ondes la relation qui caractérise ce cas particulier est aisément déduite des relations[16]. Nous avons :

$$U_g^2 = U_{\eta g}\, g^2 + U_{2g}^2 \qquad (19)$$

Cette relation peut être vérifiée dans la mesure où les facteurs d'interactions électrons-cristal varient en fonction de l'énergie incidente des

électrons à cause des effets relativistes. On a en effet, en fonction de l'énergie cinétique E de l'électron incident :

$$U_g = U_g^o \left(1 + \frac{E}{m_o c^2}\right) \qquad (20)$$

ou : - $U_g^o$ est le facteur d'interaction électron cristal indépendant de l'énergie (terme de couplage défini par la relation 12).

- E énergie cinétique des électrons.

La relation de détermination de la tension critique $E_c(g)$ peut être écrite en fonction de facteurs indépendants de l'énergie.

$$E_c(g) = m_o c^2 \left(\frac{U_{2g}^{o}}{U_g^{o2} - U_{2g}^{o2}} - 1\right) \qquad (21 - a)$$

en fonction des facteurs de diffusion [30] :

$$E_c(g) = m_o c^2 \left(\pi V_c \frac{g^2 F_{2g}}{F_g^2 - F_{2g}^2} - 1\right) \qquad (21 - b)$$

- $V_c$ volume de la maille élémentaire

- $F_g$ et $F_{2g}$ sont les valeurs du facteur de diffusion associé aux directions $(\vec{k} + \vec{g})$ et $(\vec{k} + \vec{2g})$ -

en fonction des composantes de Fourier du potentiel d'interaction :

$$E_c(g) = m_o c^2 \left(E_o (g\, a_o)^2 \frac{V_{2g}}{V_g^2 - V_{2g}^2} - 1\right) \qquad (21 - c)$$

- $E_o$ constante de Rydberg
- $a_o$ rayon de l'atome de Bohr

- $V_g$ et $V_{2g}$ composante de Fourier du potentiel d'interaction électron-cristal exprimés en électron volts,

Pour que la tension critique associée à une réflexion et à un corps donné existe, il faut que le terme entre crochet de la relation précédente soit positif. Dans le cas opposé, l'électron aurait une énergie cinétique négative. Pour l'or et les métaux lourds en général, il n'y a pas de tension critique correspondant aux réflexions de faible indice(III), (200) [30].

Cette relation donne un ordre de grandeur des valeurs de tension

critique. Il peut être intéressant de rechercher le rôle des N-3 ondes négligées.La correction de Bethe permet d'en faire l'étude.

e) Correction de Bethe [10]

Le traitement de la tension critique que nous venons d'exprimer a été fait à l'aide d'une théorie à trois ondes. Il est intéressant d'étudier maintenant l'effet des autres ondes systématiques sur les valeurs des tensions critiques. La seconde approximation de Bethe revient à considérer que l'on peut tenir compte des ondes faiblement excitées en effectuant une correction sur les potentiels d'interactions électron cristal.

Les composantes d'un champ d'ondes calculées par la théorie à N ondes s'écrivent :

$$c_g^{(i)} = - \sum_{\tau \neq g} \frac{c_\tau^{(i)} U_{g-\tau}}{K_o^2 - k_g^{(i)2}} \qquad (- 22 -)$$

La correction de Bethe consiste à considérer que la somme écrite pour une somme infinie de termes peut se réduire à la somme de trois termes : ceux qui correspondent aux trois ondes considérées $c_o^{(i)}$, $c_g^{(i)}$, $c_{2g}^{(i)}$.

Evaluons tout d'abord :

$$K_o^2 - k_\tau^{(i)\,2} = K_{oz}^2 + g^2 - k_z^{(i)2} - (\vec{\tau} - \vec{g})^2$$

$(\vec{k}^{(i)} + \vec{\tau})$ n'est pas à une orientation de Bragg, on a donc : Fig. 6

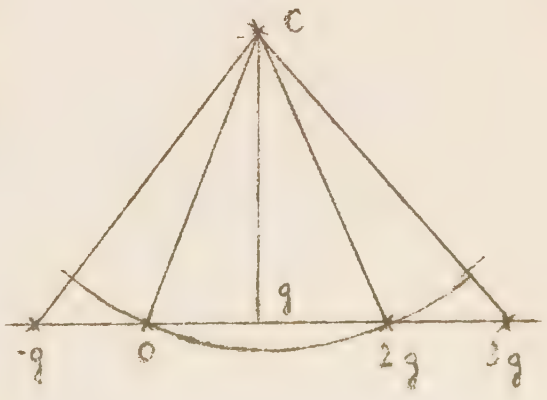
$$K_o^2 - k_\tau^{(i)2} = g^2 - (\vec{\tau} - \vec{g})^2$$
$$= - g^2(\tau - 2)\tau$$

dans cette dernière relation

$\tau$ est un nombre :

$$\vec{\tau} = \tau \vec{g}$$

Figure 6.



$$c_\tau^{(i)} = + \frac{c_o^{(i)} U_{\tau g} + c_g^{(i)} U_{(\tau-1)g} + c_{2g}^{(i)} U_{(\tau-2)g}}{g^2 (\tau - 2)\, \tau}$$

Dans cette relation on suppose que :

$$\sum_{\tau \neq 0,1,2} \frac{c_\tau^{(i)} U_{(\tau-1)g}}{g^2(\tau - 2)\, \tau} \ll c_g^{(i)}$$

le système d'équation s'écrit :

$$\begin{vmatrix} K_o^2 - k_o^{(i)2} + U_{oo} & U_{go} & U_{2go} \\ U_{og} & K_o^2 - k_o^{(i)2} + U_{gg} & U_{g2g} \\ U_{o2g} & U_{2gg} & K_o^2 - k_o^{(i)2} + U_{2g2g} \end{vmatrix} \begin{vmatrix} c_o^{(i)} \\ c_g^{(i)} \\ c_{2g}^{(i)} \end{vmatrix} = 0$$

avec :

$$U_{go} = U_{og} = U_{g2g} = U_{2gg} = U_g + \sum_\tau'' \frac{U_{\tau g} U_{(\tau-1)g}}{g^2 (\tau - 2\, \tau} = \Delta U_g + U_g$$

$$U_{o2g} = U_{2go} = U_{2g} + \sum_\tau'' \frac{U_{\tau g} U_{(\tau-2)g}}{g^2 (\tau - 2)\, \tau} = U_{2g} + \Delta U_{2g}$$

$$\Delta U_{oo} = \Delta U_{2g2g} = \sum_\tau'' \frac{|U_{\tau g}|^2}{g^2(\tau-2)\tau}$$

$$\Delta U_{gg} = \sum_\tau'' \frac{|U_{g(\tau-1)}|^2}{g^2 (\tau-2)\tau}$$

le signe $\Sigma''$ signifie que $\tau$ est différent de o, g, 2g.

On peut remarquer que la correction de Bethe agit de façon différente sur les termes diagonaux. Une translation de l'origine sur l'axe de détermination des valeurs propres permet d'obtenir une relation analogue à la relation (19) qui définit la tension critique à trois ondes dans laquelle on a remplacé :

$$g^2 \to g^2 + \Delta U_o \quad , \quad U_g \to U_g + \Delta U_g$$

$$U_{2g} \to U_{2g} + \Delta U_{2g} \quad , \text{ avec } \Delta U_o = \Delta U_{gg} - \Delta U_{oo}$$

Dans ces conditions la variation de la valeur de la tension critique $\Delta E_c/E_c$ est donnée par la différentielle de la relation (21 a) )

$$\frac{\Delta E_c(g)}{E_c(g)} = \frac{\Delta U_{2g}}{U_{2g}} + \frac{\Delta U_o}{g^2} + \frac{2\,U_{2g}\Delta U_{2g} - 2\,U_g \Delta U_g}{U_g^2 - U_{2g}^2}$$

Il reste à déterminer les ordres de grandeur de $\Delta U_o$ $\Delta U_g$ et $\Delta U_{2g}$

On peut donner un ordre de grandeur de ces valeurs en prenant uniquement les premiers termes de la somme. On trouve alors :

$$\frac{\Delta U_g}{U_g} \simeq \frac{2\,U_{2g}}{5\,g^2} \qquad \frac{\Delta U_{2g}}{U_{2g}} \simeq \frac{2\,U_{2g}}{3\,g^2}$$

$$\frac{\Delta U_o}{g^2} = -1/g^4 \left( \frac{U_g^2}{3} - \frac{5\,U_{2g}^2}{8} \right)$$

$$\frac{\Delta E_c}{E_c} = \frac{\Delta U_{2g}}{U_{2g}} \left(1 + \frac{2}{(U_g^2/U_{2g}^2) - 1}\right) - \frac{\Delta U_g}{U_g} \left( \frac{2}{1 - \frac{U_{2g}^2}{U_g^2}} + \frac{\Delta U_o}{2} \right.$$

Dans le cas de la rangée systématique (111) du cuivre la somme des deux premiers termes est positive mais inférieure en valeur absolue au second terme qui, lui, est négatif. On trouve :

$$\frac{\Delta R}{E} = -2\,\%$$

Les relations entre les $U_g$ sont en première approximation conservées quand le vecteur $\vec{g}$ caractérisant la réflexion est changé.

Le troisième terme varie en $1/g^4$ alors que les deux premiers varient en $1/g^2$. Ainsi $\frac{\Delta E}{E}$ peut devenir positif pour des vecteurs $\vec{g}$ de haut indice.

En général, les résultats sont peu améliorés par la correction de Bethe (Tableau III). L'utilisation des relations (21) suffit presque toujours à donner un bon ordre de grandeur des valeurs de tension critique, à condition, bien sûr, d'avoir effectué la correction de Debye - Waller sur les termes de couplages $U_g$ (effet de température).

Ainsi le tableau III donne les tensions critiques calculées dans le cuivre à l'aide des facteurs de diffusion donnés par Doyle et Turner et corrigés pour les effets de température.

| | 3 ONDES | 3 ONDES CORRIGEES | 7 ONDES |
|---|---|---|---|
| 111 | 481 kV | 472 kV | 413 kV |
| 200 | 782 kV | 734 kV | 697 kV |

TABLEAU III

La théorie à N ondes ( N≥ 7) permet seule d'obtenir des résultats cohérents car la condition de validité de la correction de Bethe n'est en général pas respectée aux hautes tensions (≥ 300kV)

f) - Généralisation, théorie à N ondes -

L'étude à trois ondes de la tension critique nous a permis de comprendre le sens physique des résultats expérimentaux à l'aide d'un simple calcul à la main. Cependant, les valeurs obtenues par cette approximation ne cadrent pas avec la réalité car les ondes négligées peuvent jouer un rôle important.

L'utilisation de la théorie dynamique à N ondes permet d'obtenir des résultats sans approximations grossières. Cette méthode a cependant l'inconvénient de nécessiter l'emploi d'un calculateur. Les calculs à 7 ondes ou plus consistent à rechercher les valeurs propres et les vecteurs propres d'une matrice de rang supérieur à 7. La technique de détermination de la tension critique est différente de celle utilisée dans la théorie dynamique à trois ondes. Pour celle-ci une relation caractéristique permettait de déterminer directement la tension critique. Dans le cas de N ondes le problème est pris autrement : on recherche de façon systématique, en faisant varier l'énergie des électrons incidents, le minimum de la différence entre les valeurs propres associées aux champs d'ondes responsables du phénomène de ten-

sion critique.

2) Cas des autres ordres de réflexions

Nous n'avons étudié jusqu'ici que l'orientation correspondant à la réflexion du second ordre en position de Bragg. Pour d'autres orientations, il peut exister des énergies pour lesquelles deux valeurs propres sont confondues. Il y a dans ces cas une dégénérescence qui ne perturbe que faiblement les constrastes dynamiques.

a) Réflexion du premier ordre :

Un raisonnement quantique montre qu'il ne peut y avoir de dégénérescence accidentelle pour la réflexion du premier ordre en position de Bragg. Cela signifie que les deux premières valeurs propres ne peuvent être égales et ceci quel que soit le nombre d'ondes considérées. Ce point peut être explicité en regardant le comportement du terme de correction de Bethe sur les potentiels d'interaction à deux ondes.

$$U_g \rightarrow U_g + \sum_{\tau \neq 0,1} \frac{U_\tau U_{\tau-1}}{g^2 \tau (\tau-1)} \qquad (23)$$

Cette somme est toujours positive car les réflexions supplémentaires sont toutes extérieures à la sphère d'Ewald. La distance entre les deux nappes est donnée en première approximation en deux ondes à l'aide du potentiel corrigé par :

$$\Delta k = \frac{2}{k} \left( U_g + \sum_{\tau \neq 0,1} \frac{U\ U_{\tau-1}}{g^2 (\tau-1)\tau} \right) \qquad (24)$$

Le terme entre crochet est strictement positif et donc toujours différent de 0.

On peut également exprimer sous forme littérale en fonction des composantes des ondes la distance entre deux nappes de la surface de dispersion. Cette expression est obtenue à partir de la relation de définition du système d'équation séculaire. Les valeurs propres $\Delta k^{(i)}$ sont définies par :

$$(k^{(i)2} - K_o^2)\, c_o^{(i)} = \sum_\tau c_\tau^{(i)} U_{-\tau}$$

si $c_o^{(i)} \neq 0$ on peut écrire :

$$k^{(i)2} - K_o^2 \simeq 2 K_o \Delta k^{(i)} = \sum_\tau U_{-\tau} c_\tau^{(i)} / c_o^{(i)}$$

La distance entre deux nappes pour une orientation donnée du faisceau d'électrons est donnée par :

$$\delta k^{(i,j)} = \Delta k^{(i)} - \Delta k^{(j)} = \frac{1}{2 K_o} \sum_\tau U_\tau \left( \frac{c_\tau^{(i)}}{c_o^{(i)}} - \frac{c_\tau^{(j)}}{c_o^{(j)}} \right)$$

En particulier pour les deux premières nappes en limite de la première zone de Brillouin :

$$\delta k^{(1,2)} = \frac{1}{2 K_o} \left( \sum_\tau U_\tau \left( \frac{c_\tau^{(1)}}{c_o^{(1)}} - \frac{c_\tau^{(2)}}{c_o^{(2)}} \right) \right)$$

en posant : $U_\tau(E) = \left(1 + \frac{E}{m_o c^2}\right) U_\tau^o$

la relation précédente devient :

$$(25) \qquad \delta k^{(1,2)} = \delta k_2^{(1,2)} \left( 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{c_{-g}^{(1)}}{c_o^{(1)}} - \frac{c_{-g}^{(2)}}{c_o^{(2)}} \right) + \frac{U_{2g}}{2U_g} \left( \frac{c_{2g}^{(1)}}{c_o^{(1)}} - \frac{c_{2g}^{(2)}}{c_o^{(1)}} \right) \right)$$

où $\delta k_2^{(1,2)}$ est la distance entre les nappes (1) et (2) de la théorie dynamique à deux ondes :

$$\delta k_2^{(1,2)} = \left(1 + \frac{E}{m_o c^2}\right) \frac{2 U_g}{K_o}$$

Le premier terme correctif, positif aux tensions inférieures à 1500 kV, devient dans le cas du cuivre négatif au dessus. Le second terme est, lui, toujours positif.

Les variations de ces deux termes sont données en fonction de l'énergie sur la planche III a. Sur cette courbe, nous représentons en plus les variations de :

$$c_{-g}^{(1)}/c_g^{(1)} = c_{2g}^{(1)} / c_o^{(1)} \quad \text{et} \quad c_{-g}^{(2)}/c_o^{(2)} = - c_{2g}^{(2)}/c_o^{(2)}$$

Ces deux rapports sont des fonctions croissantes de l'énergie. Ceci est évident car la sphère d'Ewald devenant de plus en plus plate quand la tension augmente les coefficients d'excitation des champs d'ondes pour un $\vec{g}$ fixé tendent tous vers des valeurs comparables.

Sur la courbe (III b) est représentée la variation de $\delta k^{(1,2)}/\delta k_2^{(1,2)}$. Aux basses tensions les deux corrections sont de signe positif ; le rapport augmente alors en fonction de la tension. A partir de 15000 kV le premier terme correctif devient négatif et le rapport $\delta k^{(1,2)}/\delta k_2^{(1,2)}$ décroît c'est-à-dire que la distance d'extinction à deux ondes à très haute tension est supérieure aux distances d'extinction à deux ondes et peut tendre vers l'infini.

Nous avons montré par cette remarque qu'au moins pour la réflexion de Bragg du premier ordre, il ne pouvait y avoir de dégénérescence ($\delta k^{(1,2)} = o$) si ce n'est pour des tensions infinies.

b) Ordres supérieurs :

Nous n'étudierons que la réflexion du troisième ordre en position de Bragg. En effet, les ordres supérieurs ont un effet très analogue sur les contrastes. Ils n'apportent pas d'effet physique très différent. Nous nous intéressons donc, ici, à la distance entre les nappes 3 et 4. L'étude de cette distance est menée en calculant à l'aide de l'ordinateur les valeurs propres associées à la matrice caractéristique.

$\Delta k^{(3,4)}$ est une fonction de la tension accélératrice des électrons. Elle passe par un minimum.

Dans certains cas, cette distance peut être"négative" , c'est-à-dire que les valeurs propres associées aux nappes échangent leurs propriétés. Mais contrairement à ce qui se passe pour le second ordre, cet échange n'existe que dans un domaine limité en énergie. On observe une seconde dégénérescence accidentelle pour une énergie supérieure et les nappes reprennent leurs propriétés originales.

Les courbes (Planche III c) calculées à partir des facteurs de diffusion du cuivre par Doyle et Turner [46] pour une réflexion (333) en position de Bragg donnent les variations de $\Delta k^{(3,4)}$ en fonction de l'énergie et de la température.

Pour des températures voisines de l'ambiante de minimum reste positif. Il n'y a pas de dégénérescence ni donc de tension critique. Par contre vers 600 K, $\Delta k^{(3,4)}$ passe par un minimum "négatif". $\Delta k^{(3,4)}$ est donc deux foix égal à 0. Il y a deux énergies de dégénérescence accidentelle qui encadrent une gamme d'énergie où les champs d'ondes (3) et (4) échangent leurs propriétés liées aux valeurs propres [35].

La variation de la distance entre nappes $\Delta k^{(3,4)}$ est lente en fonction de l'énergie. La distance effective d'extinction donnée par $\xi_{333} = \frac{1}{\Delta k^{(3,4)}}$ est d'après les calculs résumés dans le tableau IV

toujours très grande devant l'épaisseur observable de l'échantillon qui est inférieure à 2 μ dans les meilleures conditions d'observations et de tension.

TABLEAU IV

| T= 300 K | 100 kV | 400 kV | 1600 kV | 3200 kV |
|---|---|---|---|---|
| 333 | 3 μ | 7 μ | 30 μ | 5 μ |

L'amplitude recueillie à la sortie d'un cristal dans la direction 3 est donnée par :

$$\phi_{3g} = \sum_i c_o^{(i)} \; c_{3g}^{(i)} \; e^{i\,(\vec{k}^{(i)} + \vec{3}_g)\vec{r}}$$

l'intensité associée à la tache de diffraction 3g est alors :

$$I_{3g} = \phi_{3g}\,\phi_{3g}^{*} = \sum_{i \geq j} I_{i,j}$$

avec : (26)

$$I_{i,j} = 2^{(1-\delta ij)} c_o^{(i)} \; c_{3g}^{(i)} \; c_o^{(j)} \; c_{3g}^{(j)} \cos 2\pi \Delta k^{(i,j)} z$$

$I_{ij}$ est la participation à l'intensité $I_{3g}$ donnée par l'interférence des champs d'ondes i et j.
Seul $I_{3,4}$ est sensible aux variations de $\delta k^{(3,4)}$. Les autres valeurs $I_{i,j}$ auront des variations normales avec la tension et indépendantes au premier ordre de $\Delta k^{(3,4)}$.

Comme nous venons de la signaler la distance d'extinction correspondant à $\delta k^{(3,4)}$ est en général très grande devant l'épaisseur du cristal que peut traverser un faisceau d'électron. $I_{3,4}$ ne variera que peu dans la traversée d'un échantillon. Pour donner une frange blanche il faudrait que $I_{3,4}$ qui est négatif pour une épaisseur nulle, devienne positif grâce au terme de déphasage qui prendrait pour valeur -1. Pour que cela soit vérifié, il faudrait :

$z = \xi_{333/2} = 1{,}5\ \mu$ à 100 kV
$z = \xi_{333/2} = 15\ \mu$ à 1600 kV

Les électrons n'ont pas de pénétration utile aussi importante. Ce sont les autres $I_{ij}$ qui fournissent l'essentiel du contraste avec les distances d'extinction qui sont une fraction de l'épaisseur traversée par les électrons. En particulier, au moins pour les tensions supérieures à 1 MV $I_{1,2}$ est le terme principal d'interférence qui constitue l'intensité $I_{3g}$. Le système de franges associé aux champs d'ondes (3) et (4) ne sera donc que peu visible. Hors dans le cas de la réflexion du second

ordre, c'est la disparition de ce système de franges qui servait de critère de détermination des tensions critiques. On ne peut donc pas, par cette méthode, mettre en évidence les tensions critiques d'ordre supérieur à 2. A.Mazel dans le µgó a noté un effet qui dans l'état actuel des choses n'est pas mesurable (36).

c) Position symétrique

La périodicité de la surface de dispersion dans la direction $\vec{g}$ (période 2g) permet de voir qu'il y aura dégénéréscence accidentelle des valeurs propres 2 et 3 pour la position symétrique à la tension critique définie pour la réflexion de Bragg du second ordre. Le contraste observé pour cette orientation ne sera pas perturbé par le phénomène de tension critique car un des champs responsables de l'effet de contraste critique n'est pas excité ($c_o^{(3)} = o.$)

Les intensités calculées en trois ondes s'écrivent pour une tache de diffraction définie par g

$$I_g = \sum_{ij} c_o^{(i)} c_o^{(j)} c_g^{(i)} c_g^{(j)} \cos\left(2\pi(\delta k^{(i,j)})\, z\right)$$

dans le cas de trois ondes en position symétrique l'intensité du champ clair s'écrit :

$$I_o = (c_o^{(1)})^4 + (c_o^{(2)})^4 + 2\,(c_o^{(1)}\, c_o^{(2)})^2 \cos(2\pi\delta k^{(1,2)}$$

qui représente l'intensité due à l'interférence des deux champs d'ondes (2) et (3) est nulle. L'effet de contraste critique qui lui est associé n'apparaît donc pas.

3 - CONCLUSION

Nous avons mis en évidence que le phénomène de dégénéréscence accidentelle pouvait exister pour toutes les positions de Bragg sauf celle du premier ordre.

En fait, seule la réflexion de Bragg du second ordre donne un effet de tension critique sur les contrastes parce que trois conditions nécessaires sont simultanément remplies :

1) L'orientation en position de Bragg est nécessaire parce qu'à cette position les branches de la suface en dispersion ont des distances minimales.

2) Les deux champs d'ondes responsables de l'effet critique doivent fournir l'essentiel de l'intensité dans la direction

considérée. Seuls les champs d'ondes (2) et (3) ont une excitation maximale, tandis que les autres ont des excitations cinématiques.

3) La variation de la distance d'extinction responsable de l'effet doit être importante et observable.

Dans les autres cas, la seconde et la troisième ne sont en général pas vérifiées, en particulier :

- en position symétrique un des champs d'ondes participant au phénomène n'est pas excité.

- en position de Bragg du troisième ordre les deux premiers champs d'ondes en position de Bragg participent plus à l'intensité que les champs d'ondes (3) et (4) concernés par tension critique.

Une analogie peut être trouvée entre ces phénomènes de tension critique et un système mécanique constitué de ressorts convenablement disposés (voir Annexe 3).

## III RESULTATS EXPERIMENTAUX

### 1) Méthodes d'observations

Nous avons montré dans la première partie de ce chapitre que le phénomène de tension critique ne pouvait être mis en évidence que pour une orientation particulière du faisceau d'électrons par rapport aux plans réflecteurs.

L'effet caractéristique de la tension critique est la disparition à cette tension de l'intensité associée à la réflexion du second ordre en position de Bragg. (interférences destructives). La comparaison des valeurs prises pour plusieurs tensions accélératrices des électrons par l'intensité associée à une orientation particulière est une manipulation très délicate. En effet, il est nécessaire de comparer entre elles différentes mesures. Il est pour cela indispensable, de contrôler exactement le flux du faisceau incident, de conserver l'orientation de la plage et de traiter les émulsions photographiques avec le soin nécessaire.

Par contre, en faisant le rapport de deux intensités correspondant à des orientations différentes sur une même plaque photographique pour une tension donnée, il est possible d'avoir sur une même micrographie une information complète qui peut être comparée à celles obtenues aux autres tensions.

Deux méthodes basées sur ce principe permettent d'étudier les contrastes de tensions critiques.

#### a) Lignes de Kikuchi

Watanabe et Coll. ont mis en évidence que la ligne de Kikuchi du second ordre n'est plus excitée à la tension critique [28]. Cet effet correspond à une inversion des contrastes de lignes de Kikuchi au passage de la tension critique. Ce phénomène a été remarqué aussi par A.Mazel [36] à 820 kV pour une réflexion (200) du MgO et L.E. Thomas l'utilise comme critère de détermination des tensions critiques [37].

L'échantillon pour de telles expériences est d'orientation constante par rapport au faisceau incident. La variation d'orientation des électrons est due aux interactions inélastiques. Ils sont ainsi dif-

fusés dans une grande partie de l'angle solide en particulier suivant toutes les orientations de Bragg.

L'effet de tension critique a pu être mis en évidence par les lignes de Kikuchi parce que les électrons, qui sont à l'origine de leur formation conservent, comme il a été montré par Duval et Henry [38] une partie non négligeable de leur cohérence. De plus, une analogie certaine existe entre les intensités relevées sur le diagramme de Kikuchi et celles associées aux contoures d'extinction [39,40].

La détermination de la tension critique par cette technique ne peut être faite qu'avec des échantillons assez épais. Cependant, il semble possible d'utiliser un faisceau très convergent pour cette détermination. Dans ce cas, on obtient des lignes de pseudo-Kikuchi qui doivent être sensibles à ce phénomène [40].

b) Contour d'extinction [9]

Pour mettre en évidence le phénomène de tension critique il faut comparer sur une même micrographie en champ sombre 2g l'intensité associée à la réflexion de Bragg du second ordre à une autre, d'orientation différente. Le rapport de ces deux intensités donnent une information absolue à condition, bien sûr, que les plaques photographiques soient convenablement utilisées.

L'utilisation d'échantillons courbés permet de faire varier l'orientation relative de l'échantillon par rapport au faisceau d'électron qui peut ainsi exciter les différents ordres de réflexions de Bragg nécessaires à la détermination de la tension critique.

Cependant, la disparition de l'intensité $I_{2g}$ ($s_{2g} = o$) peut être un phénomène accidentel lié à une épaisseur traversée par les électrons égale à (n + 1/2) distances d'extinction dynamique $\xi_{2g}$. Une telle

incertitude est levée par l'utilisation d'échantillons à épaisseur variable (43)

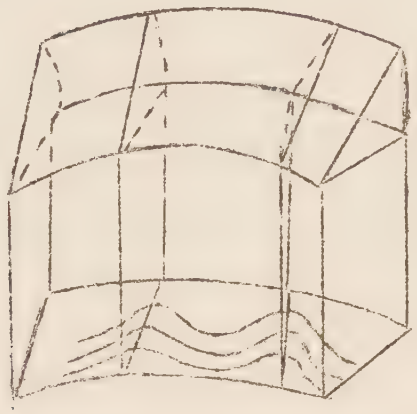


Figure 7.

Ces deux remarques nous guident dans le choix de la forme de l'échantillon :

- la forme de coin assure la variation d'épaisseur de 0 à une valeur maximale telle que les effets de franges d'intensité soient bien contrôlés

- le cristal courbé permet la variation relative de l'orientation du faisceau d'électron par rapport au cristal.

Ainsi pour des plans réflecteurs normaux à l'arête du coin la variation d'épaisseur se fera perpendiculairement à l'arête et celle de l'orientation lui sera parallèle (Fig. 7)

c) Justification de la méthode du cristal en forme de coin courbé.

Deux intensités servent de références : $I_{2g}(s_g=o)$ et $I_{2g}(s_{3g}=o)$. intensités du champ sombre 2g pour un faisceau d'électrons en réflexion de Bragg du premier et troisième ordre. Ces intensités sont égales parce qu'elles correspondent à ces orientations symétriques par rapport à la position de Bragg caractérisant le champ sombre.

Leurs variations avec l'énergie sont données sur la planche 3. Cette courbe donne en fait la variation de l'expression :

$$J_{2g}(s_{ng}=o) = \int_o^{z\ max} I_{2g}(s_{ng}=o,z)dz$$

où z est l'épaisseur d'échantillon traversée par les électrons.
Sur cette courbe, nous avons aussi tracé de la même façon, la courbe caractéristique $J_{2g}(s_{2g}=o)$. Elle passe par un minimum à la tension critique et ce minimum peut être comparé à $J_{2g}(s_g=o)$ qui a une variation d'intensité monotone croissante.

En plus du fait que l'incertitude sur la variation de l'intensité avec l'épaisseur est levée deux autres remarques permettent de raffiner cette méthode.

- Aux faibles épaisseurs, il existe une forte proportion d'électrons qui participent à la formation de l'image et qui n'ont eu avec le cristal que des interactions élastiques. L'effet de tension critique qui caractérise justement ces interactions est donc simple à interpréter par la théorie dynamique. De plus, l'intensité du fond continu dû aux électrons qui ont subi plusieurs chocs inélastiques est très faible. Le phénomène observé est donc plus propre qu'aux fortes épaisseurs

- Dans ces conditions, la diminution et l'annulation du terme d'interférence

$$I_{2,3} = c_o^{(2)} c_o^{(3)} c_{2g}^{(3)} c_{2g}^{(2)} \sin (\Delta k^{(2)} - \Delta k^{(3)}) z$$

qui caractérise le battement des champs d'ondes (2) et (3) dans le calcul de l'intensité $I_{2g}(s_{2g}=o)$ laisse apparaître un système de franges unique pour la réflexion du second ordre en position de Bragg.

Comme en dehors de la réflexion de Bragg du second ordre $I_{2,3}$ est faible, sa participation aux contrastes est négligeable à la tension critique pour toutes les orientations du faisceau incident. De plus, les champs d'ondes d'indices supérieure sont peu excités à ces tentions et ne donnent donc qu'une faible contribution aux intensités pour cette gamme d'orientation. Ainsi le double système de franges d'égale épaisseur et d'égale inclinaison ne dépendra que des deux champs d'ondes (1) et (2) entre les positions de Bragg du premier et troisième ordre. ( Planches IV, VI, VII) En particulier pour la réflexion de Bragg du second ordre, le système de frangesa une périodicité minimale sur laquellese raccordent de façon symétrique, les deux systèmes de franges centrés sur l'orientation $s_g=o$ et $s_{3g}=o$.

Ce système de franges n'est observé que pour les faibles épaisseurs car le champ d'onde (1)est rapidement absorbé. (Planche III a, b, c.).

Ce phénomène nous a permis de déterminer avec la précision optimale les tensions critiques.

2) Simulation

Dans un premier temps les contrastes de tension critique ont été déterminés par simulation sur ordinateur. Cette technique que nous avons déjà utilisée[44,45,34] est due à A.K. Head[45]. Elle a permis de

prévoir les images données par des électrons qui traversent des échantillons en forme de coins courbés.

a) Nombre N d'ondes -

Au-delà d'un certain nombre d'ondes N la valeur des tensions critiques associées à une réflexion du second ordre quelconque n'évolue plus que d'un faible pourcentage quand N augmente. Par contre, les temps de calcul proportionnels au carré du nombre d'ondes sont considérablement allongés. Ainsi il est raisonnable de calculer les intensités transmises et diffractées (rangée systématique) avec un maximum de cinq ondes : l'onde transmise 0, l'onde diffractée g et l'onde diffractée 2g qui permet de mettre en évidence le phénomène de tension critique et les ondes les plus excitées pour l'orientation du faisceau d'électron considéré en respectant, bien sûr, la symétrie du problème liée à l'orientation.

b) Les facteurs de diffusion -

Nous utilisons ceux donnés par Doyle et Turner dans le cas du cuivre. Les potentiels d'interaction électron-cristal qui en sont déduits sont corrigés par deux facteurs :

- terme relativiste qu'il est nécessaire de considérer pour les électrons ayant une énergie voisine ou supérieure à leur énergie au repos.

$$U_g^E = E_g^o \quad (1 + E/m_o c^2)$$

- terme traduisant les effets de la température qui rend compte par la correction de Debye Waller des vibrations des atomes autour de leurs positions d'équilibre.

$$U_g^T = U_g^o \exp - M_g \qquad \text{avec } M_g = 2\pi g^2 \overline{u^2}$$

c) Absorption -

Le traitement de l'atténuation du faisceau d'électrons par les interactions inélastiques est fait au moyen d'un potentiel imaginaire. Les composantes de Fourier de ce potentiel ont été introduites de façon telle que :

$$\frac{V'_{ng}}{V_{ng}} = \text{Cte} \quad , \qquad V'_o = V'_g$$

d) Orientation -

Le faisceau a une orientation relative au cristal qui varie de la position de Bragg du premier ordre $-\vec{g}$ à celle du quatrième ordre $+ 4\vec{g}$

la variation d'orientation a été réalisée par variation linéaire du paramètre d'orientation qui est l'abcisse de la projection du centre de la sphère d'Ewald sur la plan réciproque considéré.

e) Observations (Planche IV d) e) f))

L'intensité $I_g(s_{2g} = 0)$ ne dépend explicitement que des deux champs d'ondes (1) et (2) ; la composante, $c_g^{(2)}$ du second champ d'onde est nulle pour toute tension. Au-dessus de la tension critique et en prenant pour convention de numéroter les champs d'ondes par valeurs décroissantes, (2) et (3) seraient inversés. L'interférence entre les champs d'ondes (2) et (3) n'aura pas d'effet sur $I_g(s_{2g} = 0)$ pour toute tension et en particulier à la tension critique (Planche IV)

Au contraire pour $I_o(s_{2g}=0)$ et $I_{2g}(s_{2g} = 0)$ l'interférence entre les champs d'ondes (2) et (3) est primordiale. A la tension critique, la période de battement qui lui est associée tend vers l'infini ($\Delta k_{23}= 0$). Les variations des intensités $I_o(s_{2g}=0)$ et $I_{2g}(s_{2g}=0)$ en fonction de l'épaisseur deviennent minimales puisque les champs d'ondes (2) et (3) n'interfèrent plus. Seules les interactions de types cinématiques (1 2), (1 3) subsistent et donnent aux intensités un système de frange unique.

En fond clair, le contour $I_o(s_{2g}=0)$ disparaît à la tension critique (Planche III d) puisque $I_{2g}(s_{2g}=0)$ a une valeur minimale. Expérimentalement, l'étude du fond clair nous a peu intéressés car la variation de contraste pour cette orientation est toujours faible au voisinage de la tension critique.

Nous en donnons un exemple sur un contour associé à la réflexion (200) de l'aluminium pour cinq tensions. A 200( kV, le contour $I_o(s_{4oo}= 0)$ est bien défini mais à 1500 kV il est encore visible mais peu contrasté. Entre 900 kV et 1000kV les contrastes ne peuvent être différenciés et la tension critique n'est pas déterminée de façon précise (Planche IV).

L'intensité $I_{2g}(s_{2g}=0)$ du fond noir associée à la tache 2g passera par un minimum à la tension critique. Cet effet ne se produit que pour des couples d'orientation$(\vec{K},\vec{\nu})$ et de tension bien particuliers. Si l'on sort de ces conditions, on retrouvera un comportement classique des intensités. Par conséquent $I_{2g}(s_g=0)$, qui, normalement est faible pour toutes tensions devant $I_{2g}(s_{2g}=0)$, va devenir à la tension critique plus importante que $I_{2g}(s_{2g}=0)$ qui, en première approximation, n'est plus excitée. Nous avons utilisé ce résultat comme critère de détermination des tensions critiques.

f) Remarques

La technique de simulation a l'avantage de donner une vue d'ensemble du contraste. Il faut toutefois, remarquer que les résultats obtenus ont une précision très limitée. En effet, les échelles de teintes n'ont pas une bonne résolution et il est illusoire de rechercher avec la méthode employée, plus de 10 tons de noircissement différents. La précision sur ces intensités est donc limitée à 10 % - erreur de l'ordre de celle que l'on obtient en ne considérant que 3 ondes dans le calcul des tensions critiques. De plus la forme des contrastes observés est à peu près indépendante de la relation entre les coefficients d'absorption considérée.

Enfin la théorie dynamique avec absorption ne traite que les électrons élastiques qui passent par la diaphragme de contraste. En fait, d'autres électrons inélastiques ou quasi élastiques qui contribuent à la formation de l'image ne sont pas considérés dans ces calculs. Il est donc inutile dans ces conditions de rechercher un excès de précision pour certains paramètres alors que d'autres ne sont qu'approximatifs.

3) Conditions d'observation:

Nous avons déjà précisé la forme de l'échantillon, deux paramètres doivent encore être définis.

a) Température de l'échantillon

L'objet est observé à la température ambiante sous le faisceau En effet, on peut estimer que l'objectif refroidi par une circulation d'eau qui élimine l'échauffement dû au courant magnétisant est un bon thermostat, pratiquement à la température ambiante.

Les échantillons utilisés dans nos expériences sont obtenus à partir de disques de 3 mm de Ø, polis et amincis dans leur centre de telle manière que le contact thermique avec le porte-objet soit bon. L'échauffement lié aux pertes d'énergie par ionisation des électrons incidents dans le solide est donc pratiquement négligeable. De plus les électrons retrodiffusés par le diaphragme de contraste en place durant nos expériences ne semblent pas produire d'échauffement notable, les divers résultats expérimentaux que nous avons obtenu étant tout-à-fait reproductibles.

b) Degré de pureté de l'objet

La pureté des échantillons est de 99.9 % pour le cuivre et l'aluminium. Pour le cuivre-silicium 4 % (poids) la variation de tension

critique par rapport au métal pur, n'était pas décelable par nos mesures.

3 - Résultats expérimentaux

Nous avons déterminé avec les effets de contrastes critiques sur le champ sombre 2 g ($s_{2g} = 0$) les tensions entraînant une dégénéréscence associée à des réflexions de Bragg du second ordre dans l'aluminium et le cuivre. La précision des mesures est surtout limitée par l'existence du fond continu constitué par les électrons diffusés de façon inélastique qui repassent par le diaphragme de contraste. Ils perturbent l'étude de la variation de l'intensité $I_{2g}(s_{2g}=0)$ au voisinage de la tension critique.

Nous avons justifié l'utilisation des faibles épaisseurs pour déterminer les tensions critiques. On peut remarquer qu'expérimentalement cette méthode est beaucoup plus précise que la comparaison des intensités $I_{2g}(s_g=0)$ et $I_{2g}(s_{2g}=0)$. En effet, pour les fortes épaisseurs dans le cas de la réflexion (622) en position de Bragg dans le cuivre $I_{2g}(s_{2g}=0)$ reste très faible de 2400 kV à plus de 2700 kV. La tension critique a été déterminée en faible épaisseur à 2700 kV.

La précision sur les mesures est par cette méthode de l'ordre de 3 %.

Les résultats ci-dessous ont été obtenus à l'aide des microscopes 1,5 MV et 3,5 MV du Laboratoire :

TABLEAU V

| | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Aliminium - | | | | | | |
| | Rangée | 111 | (222) | 420 kV | ± | 15 kV |
| | " " | 200 | (400) | 950 kV | ± | 30 kV |
| Cuivre - | | | | | | |
| | " " | 111 | (222) | 320 kV | ± | 10 kV |
| | " " | 200 | (400) | 600 kV | ± | 20 kV |
| | " " | 220 | (440) | 1750 kV | ± | 50 kV |
| | " " | 311 | (622) | 2700 kV | ± | 75 kV |

Les planches IV, VI et VII donnent les déterminations des tensions critiques associées au réflexions (400), (440) et (622) en position de Bragg dans le cas de l'Aluminium pour la première réflexion et du cuivre pour les deux réflexions.

III - Utilisation de la tension critique -

L'étude de l'effet de tension critique s'est révélé intéressante pour deux applications possibles :

- La dégénérescence accidentelle caractéristique de l'interaction électron cristal peut servir de critère de validité dans le choix des courbes des facteurs de diffusion [27, 28].

- L'intensité associée à la réflexion de Bragg du second ordre minimum en champ sombre permet de mieux faire ressortir les contrastes des défauts cristallins [33]. Il existe d'autres applications des tensions critiques. Nous citerons en particulier l'étude de l'état d'ordre d'un alliage [48] et la mise en évidence de petits précipités n'ayant donc pas la même tension critique que la matrice.

1-ETUDE DES FACTEURS DE DIFFUSION

La tension critique est un phénomène étroitement lié aux facteurs de diffusion. Dans la théorie à trois ondes, l'effet de contraste critique correspondant à la dégénérescence des ondes 2 et 3 est obtenu quand la relation :

$$U_g^2 = U_{2g}\, g^2 + U_{2g}^2 \qquad (19)$$

est vérifiée.

Cette relation peut être écrite en introduisant explicitement les facteurs de structure associés aux réflexions g et 2g

$$1 + \frac{E_c(g)}{\bar{m}_o c^2} = \pi\Omega \, \frac{g^2 F_{2g}}{F_g^2 - F_{2g}^2} \qquad 21$$

- $E_c(g)$ est la tension critique associée à la réflexion d'ordre 2 g
- $\Omega$ est le volume de la maille élémentaire
- $F_g$ et $F_{2g}$ sont les facteurs de structure associés aux réflexions g et $2_g$

Nous voyons ainsi que la tension critique associée à une réflexion de Bragg 2 g donne une relation propre aux facteurs de diffusion. Cette relation est importante car elle ne consiste pas en une fonction linéaire du rapport $F_g/F_{2g}$. La détermination des facteurs de diffusion par cette méthode donnera des résultats non homothétiques si l'on fait varier les valeurs du facteur de diffusion.

a) - Détermination théorique des tensions critiques

La tension critique a été définie comme la tension pour laquelle deux des valeurs propres associées à la position de Bragg du second ordre sont confondues. La distance entre les nappes (2) et (3) $\Delta k^{(2,3)}$ passe alors par un minimum nul à la tension critique. La recherche de ce minimum peut se faire par un processus itératif en faisant varier la tension. Toutefois, les résultats des calculs montrent que la distance $\Delta k^{(2,3)}$ est une fonction linéaire de la tension ; au moins au voisinage du minimum. Un pas d'itération de l'ordre de 1% de la tension critique et une interpolation permettent d'en donner des valeurs suffisamment précises pour qu'elles puissent être comparées aux résultats expérimentaux.

Le calcul de la tension critique associée à la réflection (III) effectuée avec 7 ondes donne la courbe de la Planche VIII a). La précision obtenue dans cette détermination est meilleure que la stabilité des solutions entre 7 et 9 ondes.

α) nombre d'ondes (N)

Un paramètre important du problème est le nombre d'ondes minimum à considérer permettant de déterminer une tension critique correcte.

TABLEAU VI

| CUIVRE · N | 3 | 5 | | 7 | | 9 | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 111 | 374 kV | 329 " | 12 % | 323 " | 2 % | 322 " | 0,25% |
| 200 | 649 " | 597 " | 8,5 % | 591 " | 1 % | 591 " | 0,1 % |
| 220 | 1833 " | 1761 " | 3 % | 1758 " | 0.2 % | | |
| 311 | 2706 " | 2648 " | 2,5 % | 2645 " | 0,2 % | | |

Le tableau (VI) donne les tensions critiques calculées à partir des facteurs de diffusion de Doyle et Turner corrigés (cf. plus loin) avec 3,5,7 et 9 ondes et les variations relatives de ces tensions introduites par la prise en considération d'ondes supplémentaires.

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{V_{n+2} - V_n}{V_{n+2}}$$

On peut remarquer que l'utilisation de 7 ou 9 ondes donne le même résultat à mieux que 1%. Un calcul à 7 ondes de la tension critique associée à la rangée systématique donnera donc un bon résultat alors que le calcul à 5 ondes donnera seulement un résultat que nous pouvons définir comme cohérent.

Comme nous l'avons déjà remarqué, la valeur calculée en trois ondes donne le bon ordre de grandeur puisque la différence avec la valeur correcte est voisine de 15 %. C'est une bonne valeur de départ pour les calculs.

β) Influence de la température

Nous n'avons pas encore étudié ce problème expérimentalement. Cependant Lally et Coll.[31] ont montré que la variation de la tension critique semblait convenablement représentée en utilisant la correction de Debye-Waller. Ils ont pu ainsi vérifier que les températures de Debye qu'ils utilisaient étaient correctes.

γ) Effet du cristal réel - Absorption

E. Hewatt [49], a montré que l'effet du potentiel imaginaire sur la détermination des tensions critiques était faible. On peut intuitivement comprendre ce point en remarquant que les électrons qui subissent une diffusion inélastique traduite phénoménologiquement par un potentiel imaginaire sont déviés hors des directions de propagation élastique et ne sont plus ainsi traités par la théorie dynamique qui considère seulement les électrons élastiques ou quasi élastiques. A l'appui de ce point, on peut remarquer que le traitement de Yoshioka [50], valable pour des épaisseurs d'échantillon assez faibles, a montré que l'influence de la diffusion inélastique sur la partie réelle du potentiel est faible.

δ) - Influence des réflexions simultanées [51]

Ayroles et Coll. ont étudié le problème dans du $MgO$ Ils ont montré que les réflexions simultanées pouvaient, si elles étaient assez excitées modifier beaucoup les caractéristiques du problème. C'est ainsi qu'en excitant de façon symétrique les taches (422) ils ont déterminé pour la reflexion (200) une tension critique à 510 kV qui est, en réflexion systématique, obtenue à 830 kV .

Il est donc nécessaire de faire très attention au problème des réflexions simultanées. Nous avons vérifié que, pour chaque manipulation, le contour utilisé n'était pas perturbé si ce n'est localement par des réflexions parasites.

B) Utilisation des tensions critiques pour la détermination des facteurs de diffusion.

En introduisant dans les calculs de tension critique les facteurs de diffusion donnés dans la littérature, il est possible de choisir parmi les courbes celle qui permettra à l'aide de la théorie dynamique de rendre compte le plus correctement des phénomènes de contraste. . En fait, cette détermination est assez souvent délicate.

Ainsi pour le cuivre et pour l'aluminium nous avons testé les facteurs de diffusion donnés par Doyle et Turner [47], Ibers [52], et

Ibers et Vainshtein[53] (Plan VIII a) ont à l'aide des tensions critiques que nous avons pu déterminer expérimentalement. Les résultats sont rassemblés dans le tableau. (Il est évidemment tenu compte de la correction de Debye Waller).

TABLEAU VII

| Cu Rangée | Expériences kV | Ibers (1957) | Ibers et Vainshtein 1962 | Doyle et Turner (1968) | D. corrigé |
|---|---|---|---|---|---|
| 111 | 320 ± 10 kV | 120 kV | 356 kV | 413 kV | 322 kV |
| 200 | 600 ± 20 kV | 372 kV | 660 kV | 698 kV | 591 kV |
| 220 | 1750 ± 50 kV | 1540 kV | 1890 kV | 1880 kV | 1758 kV |
| 311 | 2700 ± 75 kV | 2440 kV | 2660 kV | 2740 kV | 2645 kV |

TABLEAU VIII

| Al Rangée | Expériences kV | Ibers (1957) | Doyle et Turner (1968) |
|---|---|---|---|
| 111 | 430 ± 15 kV | 463 kV | 460 kV |
| 200 | 950 ± 50 kV | 1005 kV | 980 kV |

La comparaison avec les résultats expérimentaux que nous avons obtenus montre que :

- Les calculs effectués à l'aide des facteurs de diffusion d'Ibers [52] déterminés par le modèle de Thomas Fermi Dirac (T.F.D.) ne sont pas satisfaisants dans le cuivre alors qu'ils sont beaucoup plus cohérents dans l'aluminium.

- Dans le cas du cuivre le calcul des [53] facteurs de diffusion effectués par Ibers et Vainshtein suivant une méthode self consistante donne des résultats cohérents.

- Les tensions critiques calculées à partir des facteurs de diffusion déterminés à l'aide de la méthode de Hartree-Fock par Doyle et Turner [47] donne des résultats acceptables dans l'aluminium et à un niveau moindre dans le cuivre.

Nous avons remarqué de plus, que les valeurs calculées des tensions critiques de faible indice (111) et (200) ont une correspondance avec les résultats expérimentaux moins bonne que celles d'indices supérieurs (220) et (311). Ce comportement est retrouvé pour les différentes courbes

de facteur de diffusion utilisées. Ceci s'explique par le fait que les facteurs de diffusion à grand angle suivent tous la loi bien établie de Rutherford.

c) - Correction des facteurs de diffusion -[27,28]

Doyle et Turner et Smith & Burge[54] ont proposé une forme analytique des courbes de facteurs de diffusion. Cette forme est une somme d'exponentielles amorties.

Doyle et Turner proposent un développement de 4 termes, Smith et Burge de 3.

$$f(x) = \sum_n A_n \, e^{-a_n x^2}$$

avec $$x = \frac{\sin\theta}{\lambda} = \frac{|\vec{g}|}{2}$$

où $\vec{g}$ caractérise le plan de réflexion g.

Nous allons par la suite effectuer une correction des facteurs de diffusion du cuivre donnés par Doyle et Turner. Ces valeurs non corrigées par le terme de Debye Waller sont données ci-dessous :

| An | : 1.579 | : 1.819 | : 1.657 | : 0.532 |
|---|---|---|---|---|
| $a_n$ | : 62.9403 | : 12.4527 | : 2.5042 | : 0.3331 |

TABLEAU IX

La réflexion(III)du cuivre donne une valeur minimum de x soit :

$$x = \frac{\sqrt{3}}{2\ 3,62} = 0,24 \quad \text{Å}^{-1}$$

La contribution de chaque exponentielle pour les réflexions(III)(200) (220)&(311)est donnée dans le tableau suivant :

| g | 1 | 2 | 3 | 4 | f(g) |
|---|---|---|---|---|---|
| 111 | 0,043 | 0,891 | 1,435 | 0,521 | 2,890 |
| | 1,4 % | 31 % | 49,6 % | 18 % | |
| 200 | 0,012 | 0,703 | 1,368 | 0,518 | 2.60 |
| | 0,5 % | 27 % | 52,5 % | 20 % | |
| 220 | $10^{-4}$ | 0,271 | 1,13 | 0,505 | 1,908 |
| | 0 | 14 % | 60 % | 26 % | |
| 311 | $3\ 10^{-6}$ | 0,133 | 0,980 | 0,496 | 1,609 |
| | 0 | 8 % | 61 % | 31 % | |
| 222 | $10^{-6}$ | 0,105 | 0,933 | 0,492 | 1,53 |
| | 0 | 7 % | 61 % | 32 % | |
| 622 | | $5\ 10^{-5}$ | 0,202 | 0,402 | 0,604 |
| | | 0 | 34 % | 66 % | |

La contribution de la première exponentielle à la valeur du facteur de diffusion sera toujours faible : elle est de 1,4 % à sa valeur maximum. Son effet sur les calculs de contrastes sera donc négligeable dans tous les cas. Chercher à corriger cette valeur, n'aurait aucune incidence sur la détermination des tensions critiques à moins de faire une correction sur l'amplitude $A_1$ très supérieure à sa valeur, ce qui n'est pas raisonnable.

Les termes 3 & 4 voient leur contribution importante surtout pour les fortes valeurs de g. il faut remarquer alors que les calculs de tensions critiques pour ces vecteurs de diffraction donnent des résultats comparables à ceux obtenus expérimentalement. Ils peuvent donc être considérés comme acceptables.

Le seul terme dont la correction aura un effet efficace sur la détermination de tension critique est donc le second terme. Sa contribution, importante pour les réflexions d'indices faibles ( >25 %), est faible pour les indices élevés (< 15 %).

Ainsi en corrigeant ce terme, on peut espérer améliorer la concordance

entre les tensions critiques théoriques et expérimentales. En utilisant la relation de définition de la tension critique à trois ondes on montre que :

$$27 \qquad \frac{dE_c(g)}{E_c(g)+m_o c^2} = \frac{dF_{2g}}{F_{2g}} \left(\frac{F_g^2+F_{2g}^2}{F_g^2 - F_{2g}^2}\right) - \frac{dF_g}{F_g} \left(\frac{2F_g^2}{F_g^2 - F_{2g}^2}\right)$$

avec

$$\frac{dF_g}{F_g} = \frac{\delta A_2 \, e^{-a_2 g^2}}{f_g} = \frac{\delta A_2}{A_2} \times \frac{A_2 e^{-a_2 g^2}}{f}$$

$$\frac{dF_{2g}}{F_{2g}} = \frac{\delta A_2 \, e^{-4a_2 g^2}}{f_{2g}} = \frac{\delta A_2}{A_2} \times \frac{A_2 e^{-4a_2 g^2}}{f_{2g}}$$

Le second terme est toujours supérieur en valeur absolue au premier, une correction $\delta A_2$ positive apportera donc une diminution de la valeur de tension critique. Par exemple pour la rangée systématique (111) (réflexion 222) on obtient :

$$dE_c(111) = - (E_c(111)+m_o c^2) \; 0,7 \frac{\delta A_2}{A_2} \text{ MeV}$$

Avec

$$F_{111} \simeq 2F_{222}$$

Pour la rangée(311) (tension critique 622) la correction sera :

$$\frac{dE_c\,(311)}{E_c(311)+m_o c} = - 0,3 \frac{\delta A_2}{A_2}$$

On remarque ainsi que la correction sur la tension critique $E_{111}$ sera plus importante que celle obtenue sur $E_{311}$ pour deux raisons :

- le coefficient multiplicatif de $\delta A_2/A_2$ est deux fois plus fort pour $E_{111}$ que pour $E_{311}$.
- la calcul correctif est établi par rapport à l'énergie totale de l'électron. Les corrections seront ainsi :

$$dE(111) = - 0,8 \times 0,7 \frac{\delta A_2}{A_2} = 0,56 \frac{\delta A_2}{A_2} \text{ MeV}$$

$$dE_c(311) = -\,3{,}2\;0{,}3\;\frac{\delta A_2}{A_2} \simeq -\,\frac{A_2}{A_2}$$

$$\frac{dE_c(111)}{E_c(111)} = -\,2\,\frac{\delta A_2}{A_2} \qquad \frac{dE_{311}}{E_{311}} = -\,0{,}35\,\frac{\delta A_2}{A_2}$$

Les valeurs des tensions critiques ainsi corrigées sont données sur le tableau XI-

TABLEAU XI

| Tension critique du cuivre | | Exp. | D.T. | D.T.C. |
|---|---|---|---|---|
| Rangée | 111 | 320 ± 10 kV | 413 kV | 322 kV |
| " | 200 | 600 ± 20 " | 698 " | 591 " |
| " | 220 | 1750 ± 50 " | 1880 " | 1758 " |
| " | 311 | 2700 ± 75 " | 2740 " | 2650 " |

Les valeurs théoriques des tensions critiques pour les facteurs de diffusion ainsi corrigés correspondent aux valeurs expérimentales à mieux que 2 %. Cette nette amélioration de la concordance des résultats théoriques et expérimentaux semble montrer que les valeurs des facteurs de diffusion aux petits angles sont légèrement sous-évalués par la méthode de Hartree Fock (47)

La correction effectuée sur $A_2$ opère dans le même sens pour chaque tension critique. Son effet sur celles-ci sera d'autant plus faible que l'indice de la réflexion sera plus élevé. Ainsi elle est six fois plus forte pour la réflexion(111) que pour la réflexion(311).

Dans le cuivre, les calculs de tensions critiques effectués à partir des courbes de facteur de diffusion données par Doyle et Turner donnent des valeurs théoriques toutes supérieures aux valeurs expérimentales. (Tableau 11 ). De plus, comme nous l'avons signalé la concordance de ces valeurs s'améliore quand l'indice de la réflexion augmente.

Une correction $\delta A_2 > 0$ effectuée sur $A_2$ permet d'abaisser comme nous venons de le montrer toutes les valeurs théoriques des tensions critiques.

Nous avons déterminé par la méthode des moindres carrés la correction à apporter à $A_2$ pour que les tensions critiques théoriques et expérimentales s'accordent le mieux possible.

$$\sum_g \left(\frac{E_c^{exp}(g) - E_c^{th}(g,A_2)}{E_c^{exp}(g)}\right)^2 = \frac{\delta V^2}{V^2}$$

Le minimum de cette fonction est obtenu sur la courbe Planche VIII-b,

$$A_2 = 2,1302.$$

TABLEAU XII

| $E_{kV}$ / $\xi g_A^\circ$ | | 100 kV | | 500 kV | | 1000 kV | | 3000 kV | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | 2 | N | 2 | N | 2 | N | 2 | N |
| 111 | D.T. | 299 | 253 | 471 | 375 | 513 | 393 | 538 | 432 |
| | D.T.C. | 285 | 242 | 449 | 360 | 490 | 380 | 515 | 425 |
| 200 | D.T. | 335 | 300 | 525 | 450 | 573 | 475 | 601 | 492 |
| | D.T.C. | 322 | 290 | 506 | 435 | 552 | 457 | 581 | 484 |
| 220 | D.T. | 474 | 461 | 746 | 712 | 814 | 762 | 855 | 766 |
| | D.T.C. | 464 | 451 | 730 | 696 | 796 | 746 | 837 | 752 |
| 311 | D.T. | 579 | 571 | 911 | 889 | 995 | 965 | 1046 | 981 |
| | D.T.C. | 570 | 562 | 897 | 877 | 979 | 947 | 1029 | 965 |

On peut remarquer que la correction effectuée sur $A_2$ ne modifie que peu les valeurs des paramètres utilisés en théorie dynamique, telles les distances d'extinction déterminées pour les facteurs de diffusion corrigés.
Le tableau ci-dessus montre ainsi les résultats des valeurs des distances d'extinction avant et après la correction que nous venons de faire dans le cas du cuivre.

2. Contraste des défauts en tension critique - (Planche IX)

A la tension critique, l'intensité associée au champ sombre du second ordre est minimum. L'effet d'un défaut sur les intensités devrait donc être important car l'intensité ne peut qu'augmenter quand un défaut perturbe la solution dans le cristal en introduisant des transitions interbandes ou intrabandes entre les champs d'ondes. Le contraste est alors maximum.

Cet effet est bien observé sur des défauts d'empilement sur du cuivre silicium comme il avait été précédemment observé par Humphreys[33] et sur des dislocations dans le cuivre (Planche IX). Si les contrastes de défauts d'empilement en champ sombre 2g sont bons, ils le sont également pour les champs clair et sombre g .

Dans le cas du cuivre, nous pouvons observer sur le champ sombre

(440) à la tension critique un dédoublement des contrastes des dislocations. On peut expliquer cet effet :

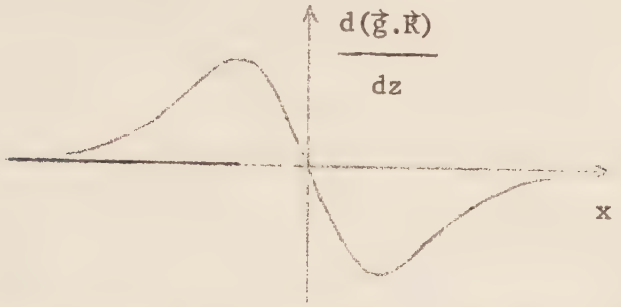



Figure 8

Le déphasage $\vec{g}\,\vec{R}.(r)$ introduit par une dislocation est typiquement donné par la figure 8 . De chaque côté de la dislocation, les conditions de potentiels critiques ne seront plus remplies et l'intensité minimum au potentiel critique ne pourra qu'augmenter. Un dédoublement de la ligne de contraste de la dislocation serait donc observé. En champ clair ou en champ sombre le dédoublement n'est pas observé. Ce point est important car il montre qu'à la tension critique les contrastes associés aux déformations pourront être larges mais bien visibles.

L'étude à la tension critique d'un défaut cristallin est limitée par le fond continu qui joue un rôle important. Son élimination par un système de filtrage d'énergie ou par l'utilisation des basses températures permettrait probablement l'étude de défauts introduisant de faibles déformations qui sont invisibles par les techniques de microscopie électronique classiques (précipités presque cohérents).

IV Conclusion -

En résumé, nous avons montré dans ce chapitre plusieurs résultats intéressants :

- la théorie dynamique à N ondes permet de bien expliquer les contrastes observés en faible épaisseur. Les simulations des contrastes de tensions critiques permettent de retrouver leur forme expérimentale.

Le nombre d'ondes N qui a été utilisé pour la détermination des contrastes n'a pas besoin d'être très grand. Ainsi nous avons observé qu'avec 5 ondes, la théorie dynamique donne de bons résultats pour les tensions critiques.

- Ce phénomène nous a permis de déterminer les facteurs de diffusion qui rendent le mieux compte des effets dynamiques en microscopie électronique.

Ainsi, dans le cas de l'aluminium nous avons vérifié que les méthodes de calcul des facteurs de diffusion (Thomas Fermi Dirac ou Hartree Fock) donnaient des résultats très équivalents et satisfaisants.

Par contre, pour le cuivre, les facteurs de diffusion calculés à l'aide du modèle de Thomas Fermi Dirac par Ibers ne sont pas bons. Les résultats obtenus avec les facteurs de diffusion déterminés par la méthode de Hartree Fock sont cohérents avec l'expérience à 30 % pour les réflexions de bas indices et s'améliorent pour les hauts indices.

Une remarque sur la forme analytique des facteurs de diffusion donnée par Doyle et Turner nous a permis d'effectuer une correction sur un des paramètres de définition. Dans ce cas, la concordance entre les résultats théoriques et expérimentaux est nettement meilleure. Cette correction semble indiquer que les facteurs de diffusion du cuivre sont sous-estimés pour les faibles angles.

Il faut remarquer cependant que la correction faite sur les facteurs de diffusion reste faible, et que pour des phénomènes plus classiques les valeurs obtenues par la Méthode de Hartree Fock seront en général satisfaisantes.

Enfin, nous avons signalé que l'étude des défauts en champ sombre désexcité par le phénomène de tension critique n'est pas dans l'état actuel des expériences une technique très fine d'investigation. L'élimination du fond continu est un préalable à une étude efficace des défauts par cette technique.

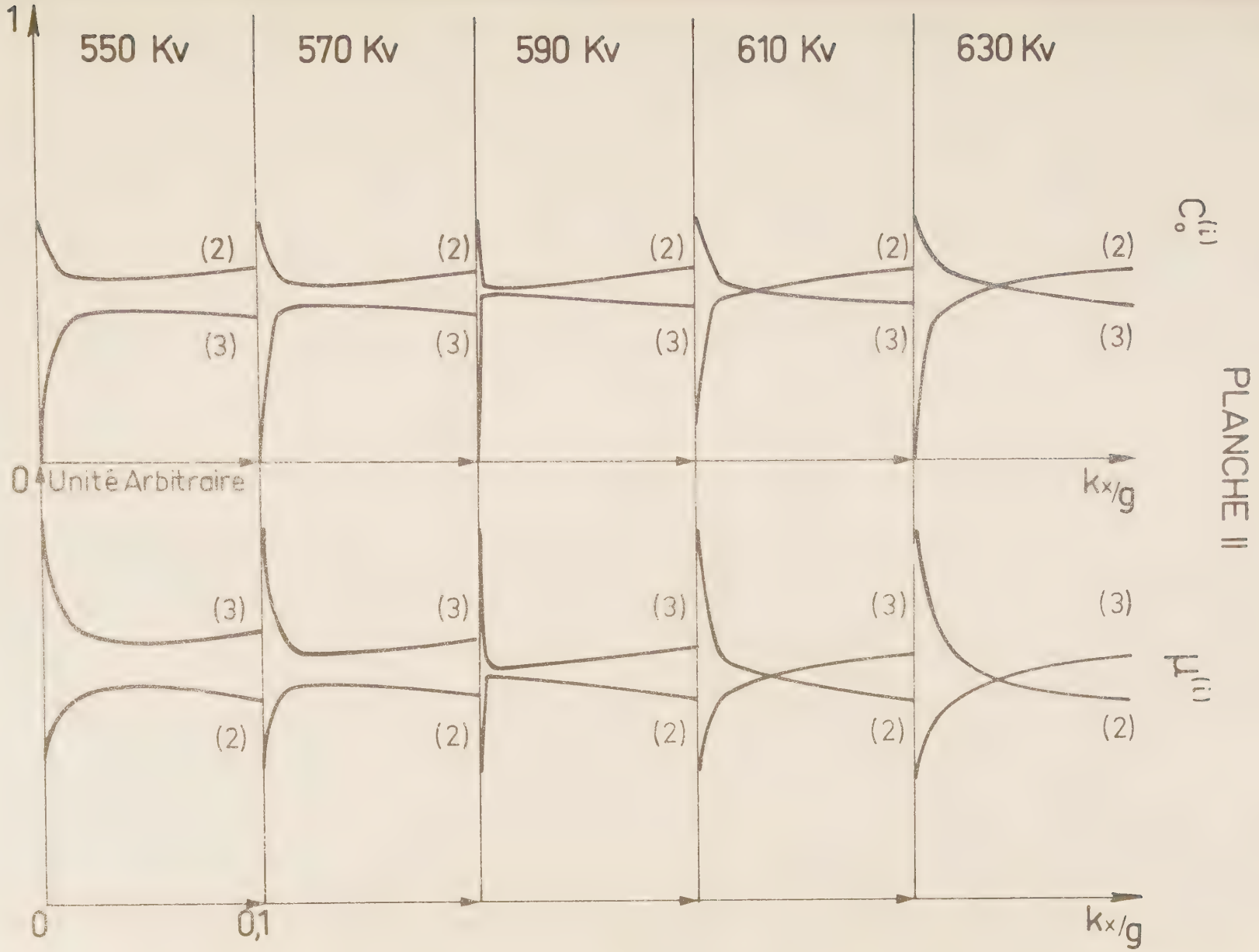
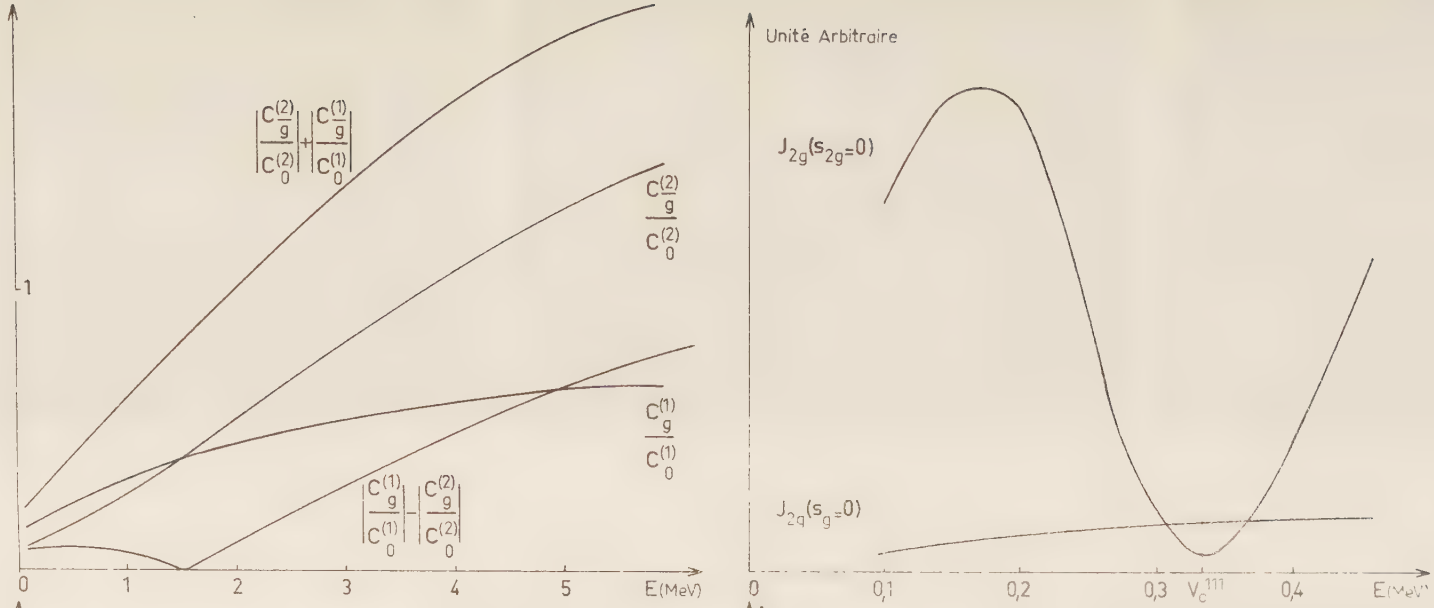



PLANCHE II

$C_o^{(i)}$

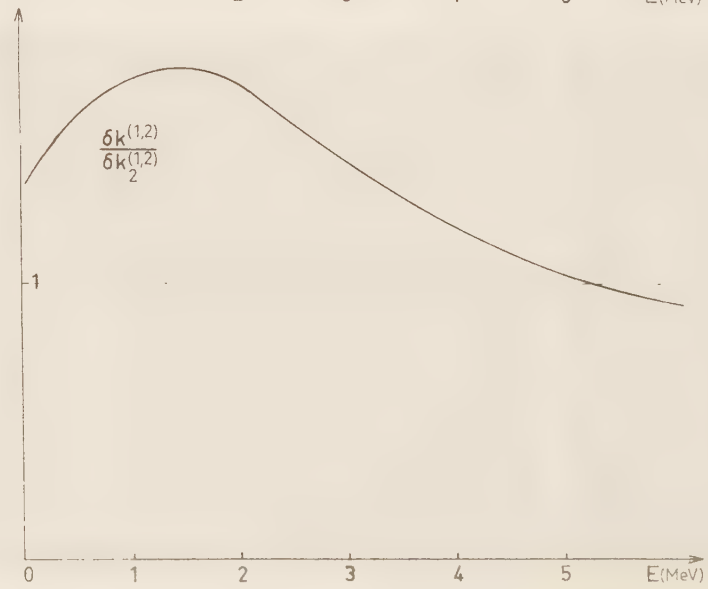
$\mu^{(i)}$

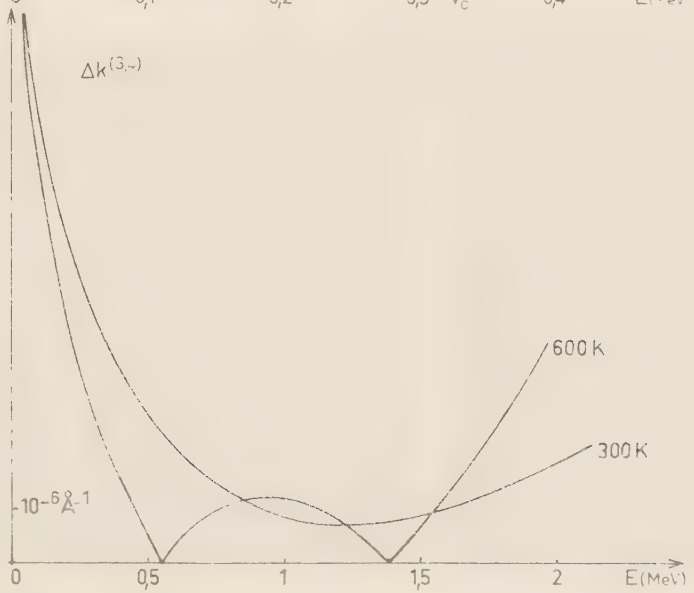
PLANCHE III



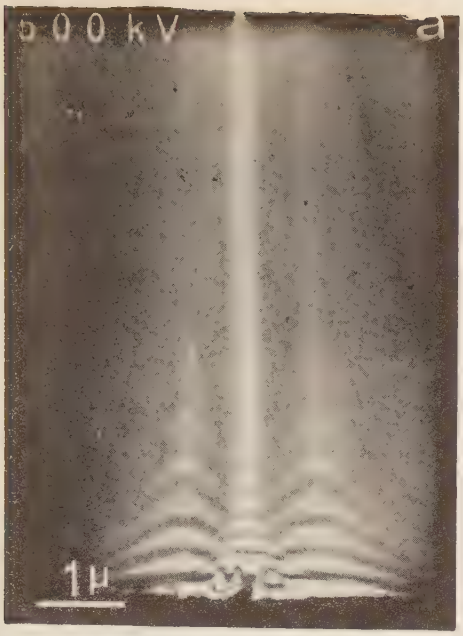






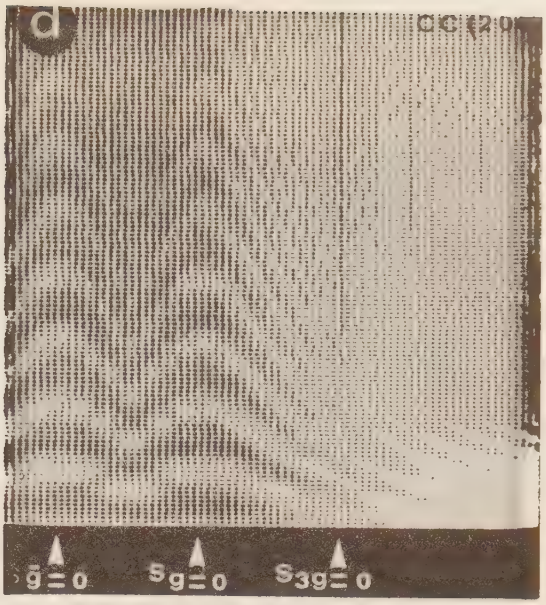



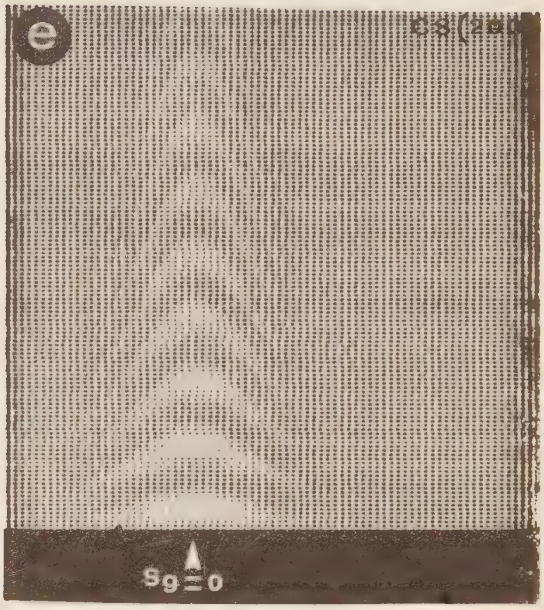

CUIVRE REFLEXION (111)


500 kV
a
1μ

600 kV
b
1μ

700 kV
c
1μ


d
sg=0
s3g=0


e
sg=0

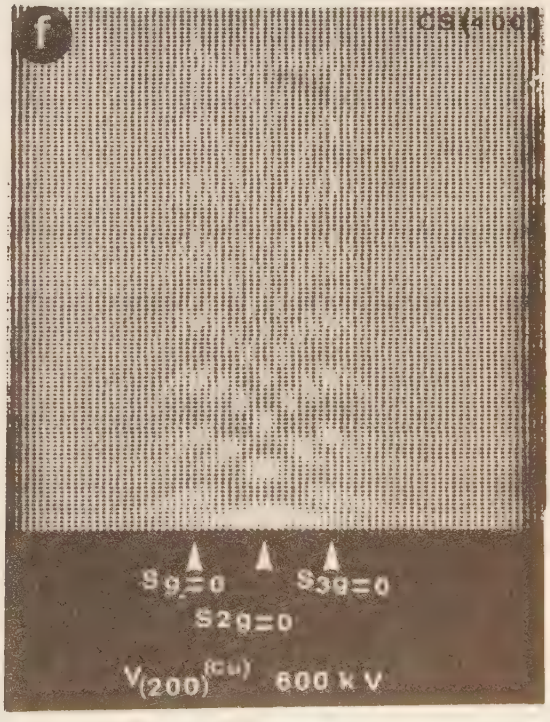
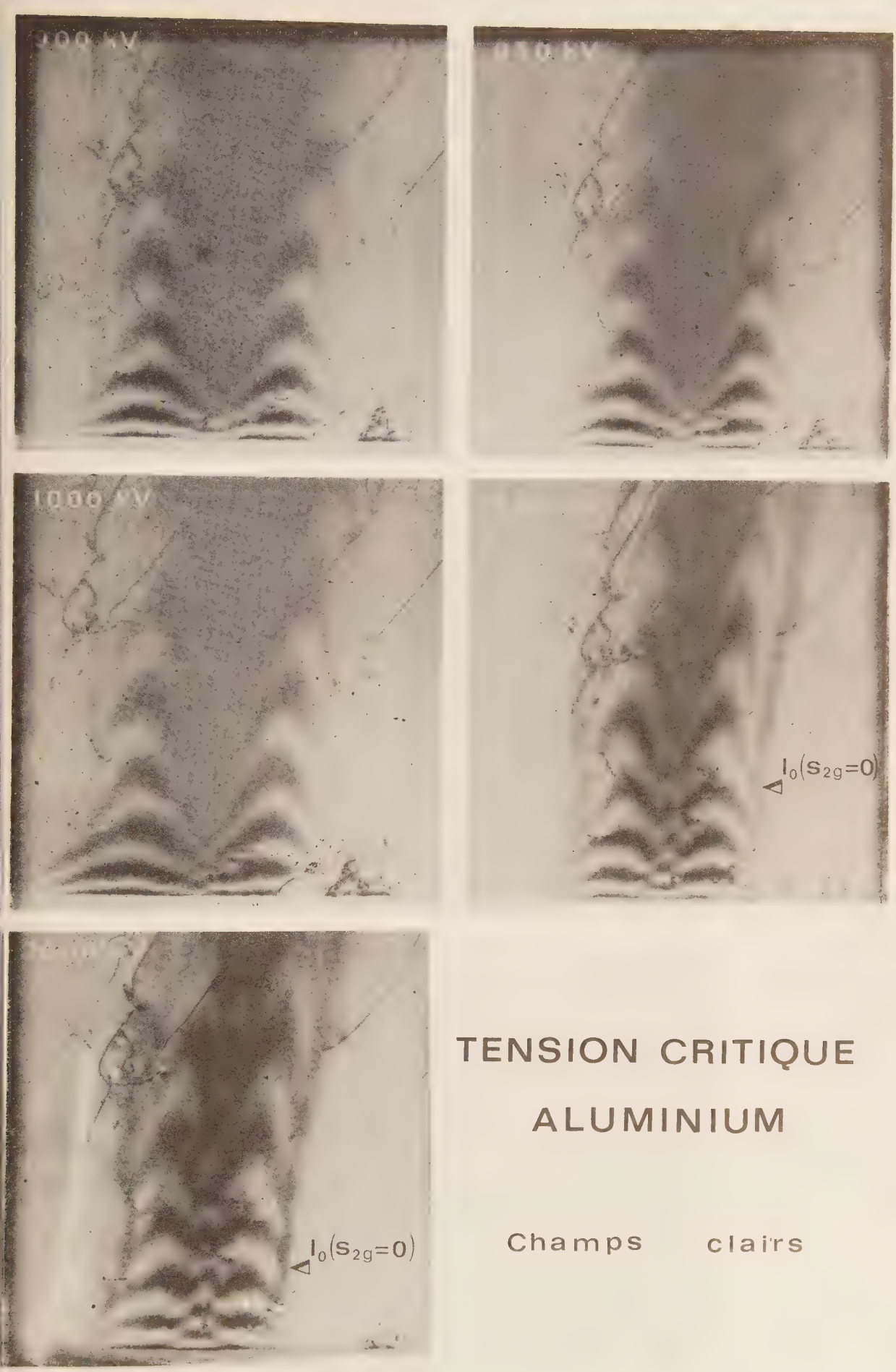

f
sg=0
s3g=0
s2g=0
V(200)(Cu) 600 kV

PLANCHE IV




# TENSION CRITIQUE

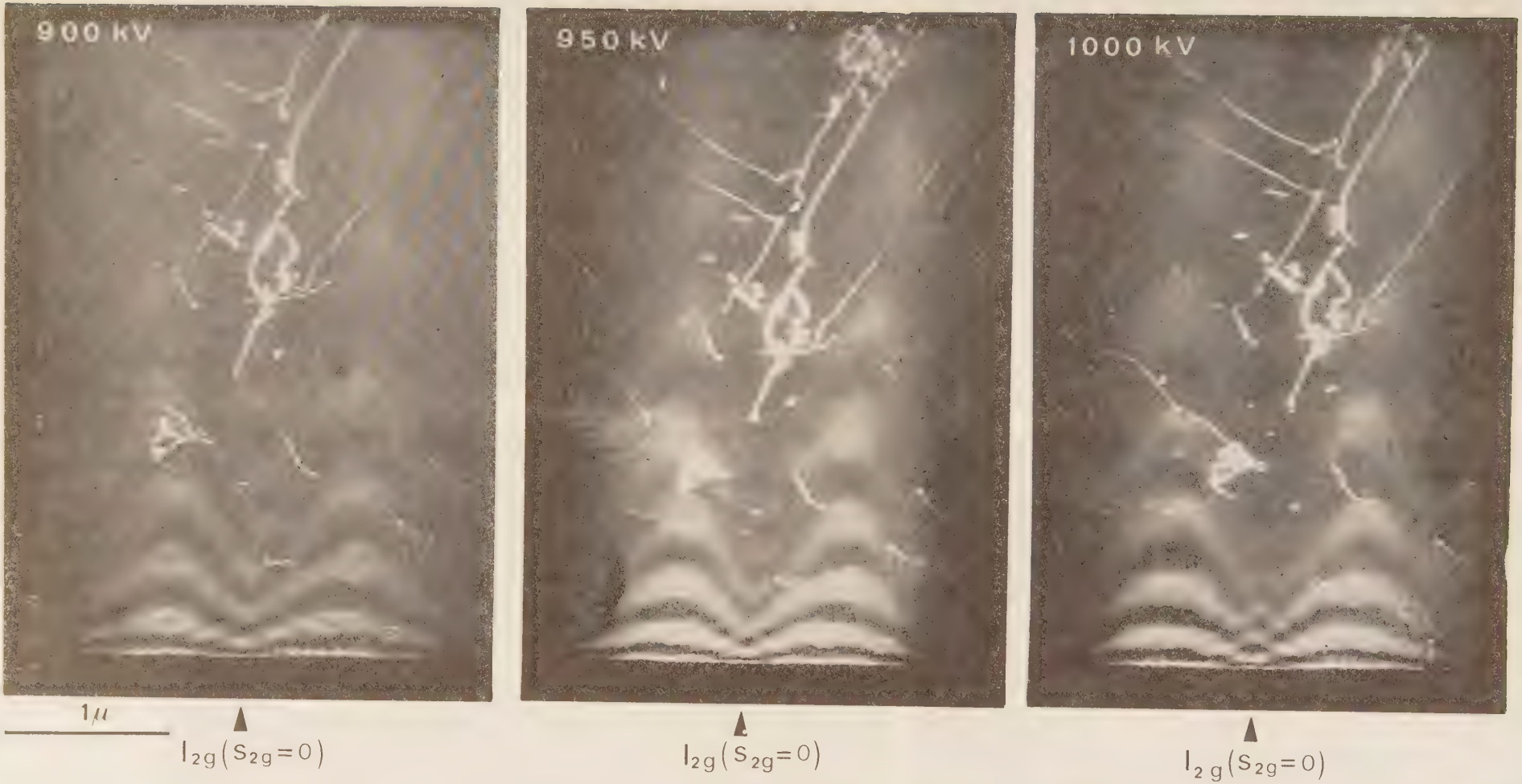
# ALUMINIUM

Champs clairs

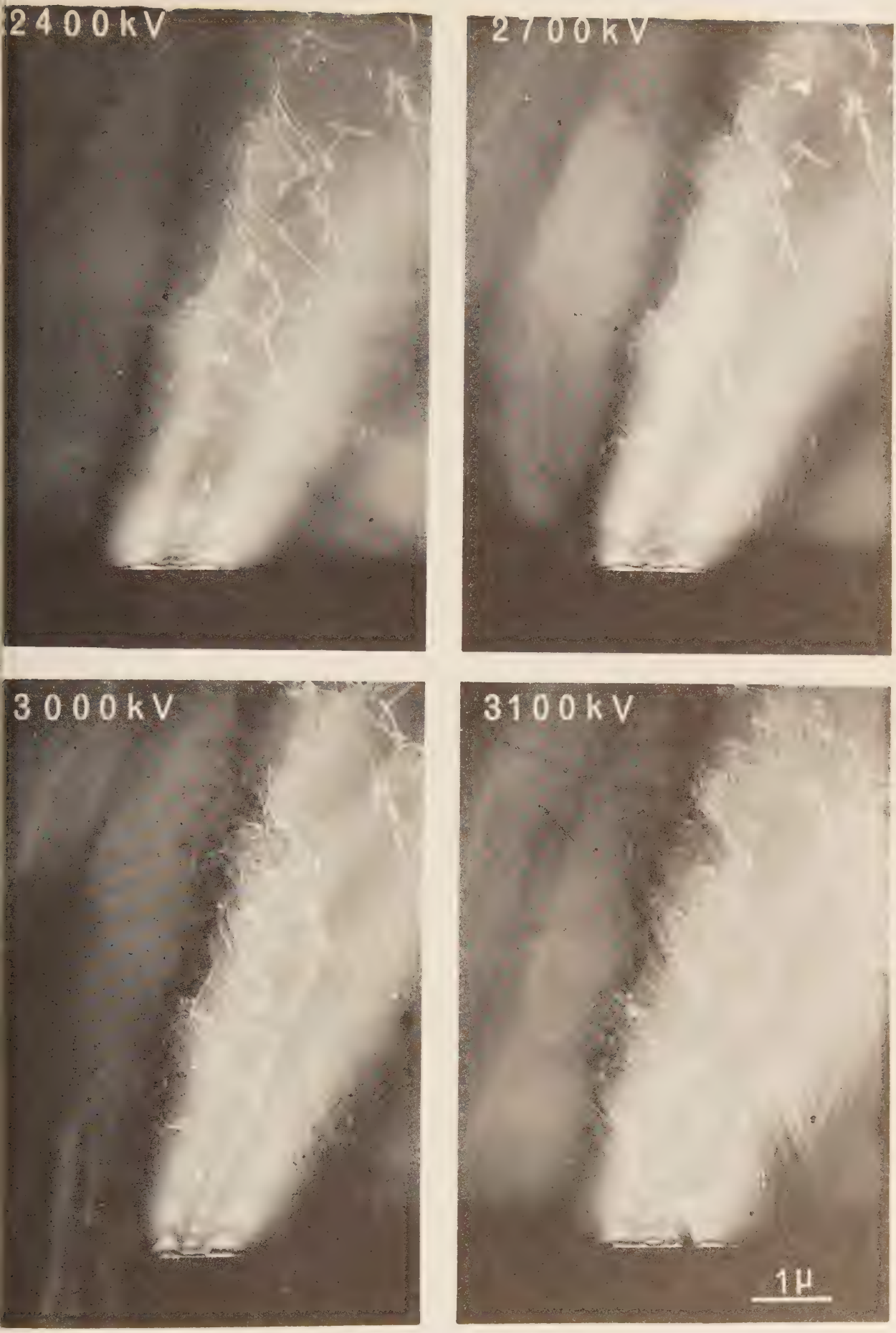
1 $\mu$

PLANCHE V

PLANCHE VI



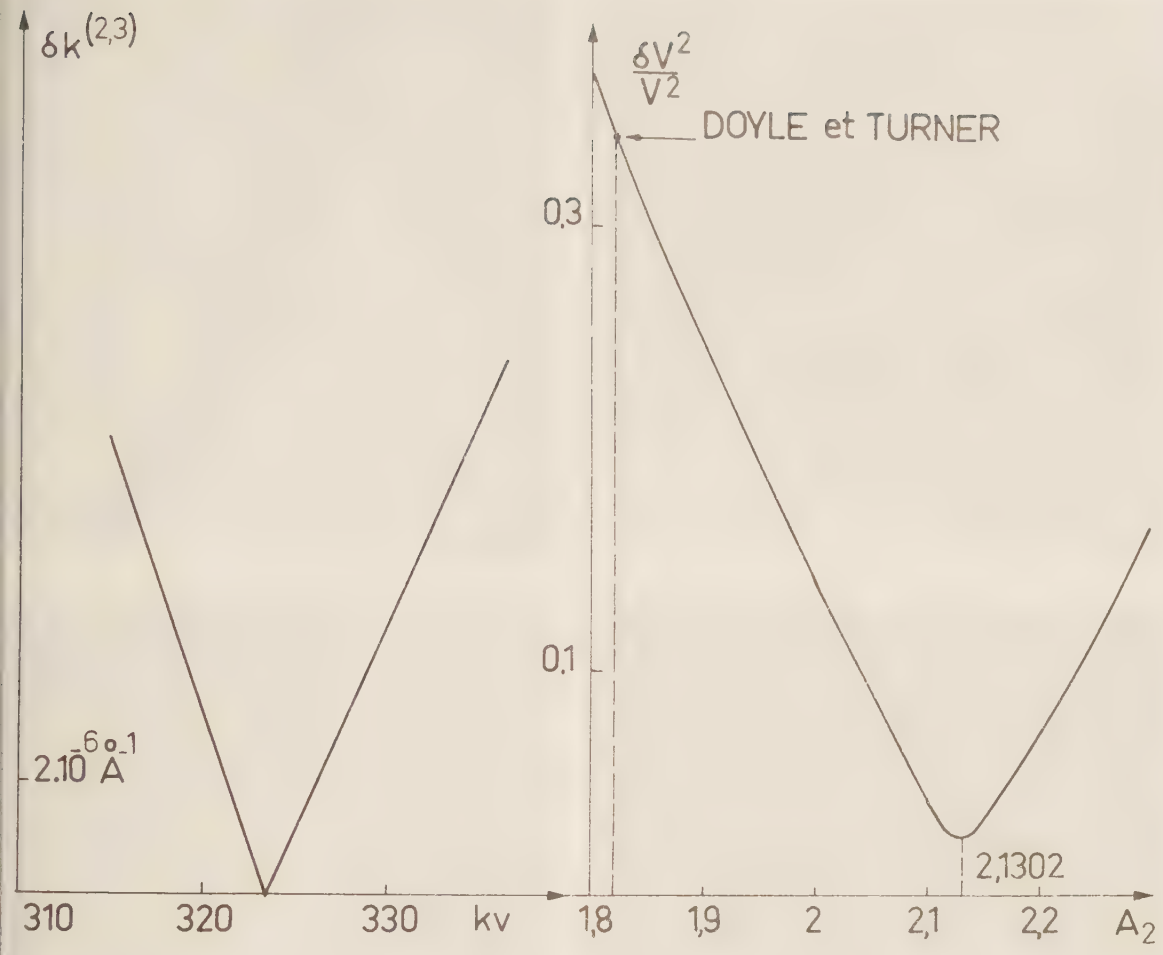

TENSION CRITIQUE $V_{400}^{Al} = 950kV$




TENSION CRITIQUE

$V_{622}^{Cuivre} = 2700kV$

PLANCHE VII




FACTEUR DE DIFFUSION

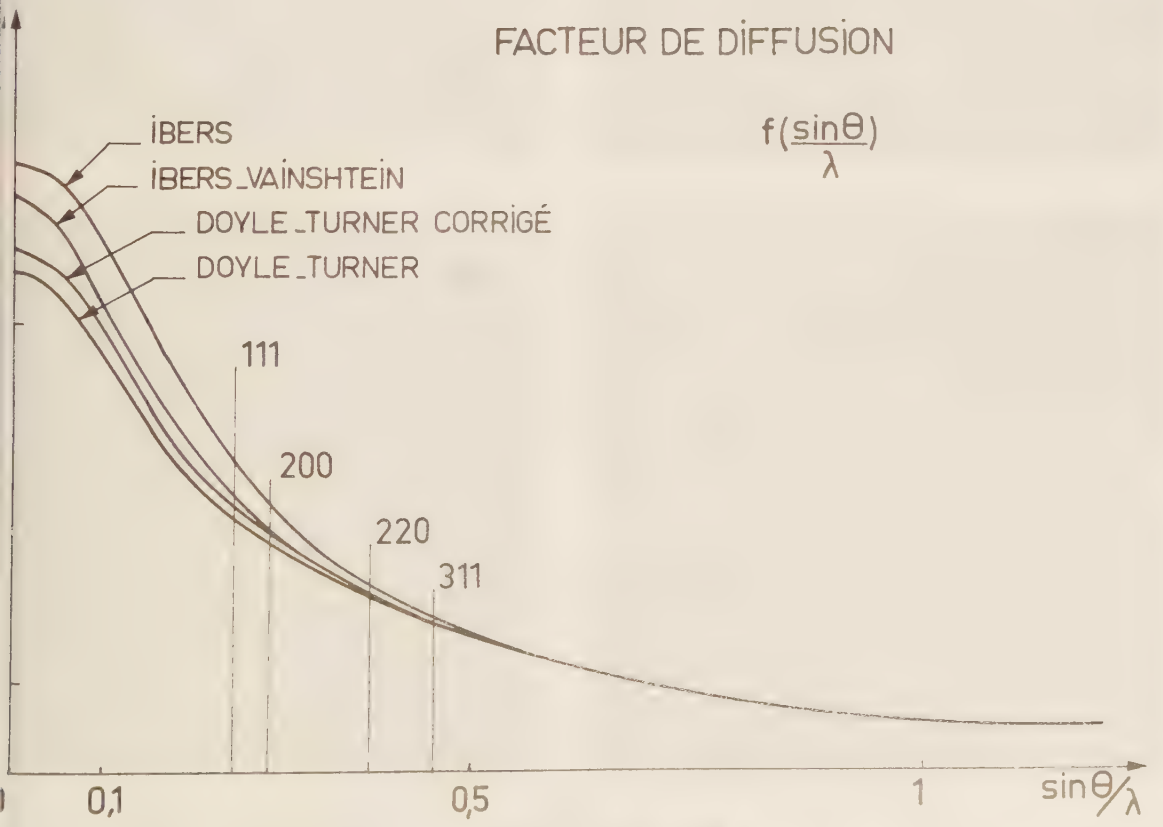



PLANCHE VIII

# CHAPITRE III - PENETRATION

## I - Introduction

## II - Interactions inélastiques

1 - Irradiations

2 - Interaction électron-électron

a) plasmons

b) excitations individuelles

c) remarques

3 - Bremsstrahlung

4 Diffusions par phonons

5 - Conclusion

## III - Etude de la pénétration

1 - Intensité transmise

2 - Contraste de pénétration

3 - Critère de pénétration utile

4 - Traitement du fond continu

## IV - Coefficient d'atténuation des champs d'ondes

1 - Méthode des perturbations

2 - Méthode de l'occupation spatiale

3 - Variation de $\mu^{(i)}$ avec l'énergie

4 - Forme de $\mu^{(i)}$ avec l'orientation

5 - Remarque sur V' (r) - Atténuation anormale

## V - Application à l'étude de la pénétration utile dans le cuivre et l'aluminium

1 - Cuivre

a) forme de V'(r)

b) position symétrique

c) position de Bragg du premier ordre

d) Pénétration utile

2 - Aluminium

a) forme de V'(r)

b) position symétrique

c) position de Bragg du premier ordre

d) position cinématique

3 - Remarque sur les défauts

4 - Amélioration de la pénétration

VI Conclusion

## I - Introduction

Les électrons accélérés même sous des tensions de plusieurs centaines de kilovolts ne peuvent fournir d'information cohérente au-delà d'une épaisseur traversée supérieure à une certaine limite. L'estimation de cette limite et son étude en fonction de la nature de l'échantillon, de la tension accélératrice des électrons et de l'orientation relative du faisceau incident par rapport au cristal constitue ce qu'on appelle l'étude de la pénétration.

Cette pénétration, fonction croissante de la tension accélératrice des électrons, est avec la diminution des effets dus à l'aberration chromatique et l'étude des défauts d'irradiation, une bonne justification de la construction de microscopes électroniques à très hautes tensions comme ceux de Toulouse. L'intérêt de l'utilisation de tels appareils est donc surtout lié à l'espoir de voir des défauts cristallins en interaction avec un échantillon considéré comme massif car pour de faibles épaisseurs les effets de forces images peuvent être importants et masquer ainsi la vraie nature et le véritable comportement du défaut. La mise en évidence de dislocations en couches minces peut même être pratiquement impossible comme par exemple pour certains types de dislocations dans le Tellure (55)

Dans les précédents chapitres les interactions électron cristal étaient toutes considérées comme dues à la diffusion élastique. Un faisceau d'électrons peut dans ces conditions traverser n'importe quelle épaisseur de cristal et fournir ainsi à la sortie une information de contraste restée unité. Expérimentalement ceci n'est jamais vérifié : à 100 kV par exemple, l'observation d'un échantillon standard d'épaisseur de quelques dizièmes de microns n'est en général plus possible. Deux phénomènes en sont la cause :

Les électrons interagissent avec un cristal réel par d'autres processus que la diffusion élastique. Ces processus sont dits inélastiques (parce qu'en produisant ces excitations les électrons incidents perdent de l'énergie) ou quasi élastiques dans le cas des phonons (56,57,58) Les ondes de Bloch associées aux électrons ayant subi de telles interactions peuvent ne plus être très cohérentes entre elles si les transitions sont dues à des interactions localisées, interactions qui dissocient les ondes de Bloch. Les électrons diffusés inélastiquement ou quasi élastiquement peuvent être diffusés en dehors du diaphragme de contraste. Le faisceau perd de son intensité : on parle alors d'absorption.

- Si les électrons inélastiques étaient totalement éliminés des faisceaux formant l'image, l'information recueillie sur les plaques

photographiques pourrait être utilisable avec un temps de pose suffisant et des émulsions photographiques assez sensibles. Or, quel que soit le temps de pose l'information transmise par un faisceau d'électrons sortant d'un échantillon trop épais est nulle ; ceci est lié à l'existence d'un fond continu constitué par des électrons rendus incohérents par des chocs inélastiques successifs ou des interactions quasi élastiques et qui repassent cependant par le diaphragme de contraste.

Dans une première partie, nous donnerons rapidement les différentes interactions inélastiques et rappellerons leurs rôles dans "l'absorption".

Puis nous traiterons la dispersion des électrons au moyen d'un potentiel imaginaire [59,60] que nous relierons à la notion d'occupation spatiale des champs d'ondes [61].

Enfin nous étudirons dans ces conditions la pénétration des électrons en fonction de l'énergie et de l'orientation. Nous replacerons cette étude par rapport aux résultats expérimentaux obtenus dans le cuivre et l'aluminium.

## II INTERACTIONS INELASTIQUES

### 1) Déplacement d'atomes de leur site sous l'impact d'électrons de très hautes énergies.

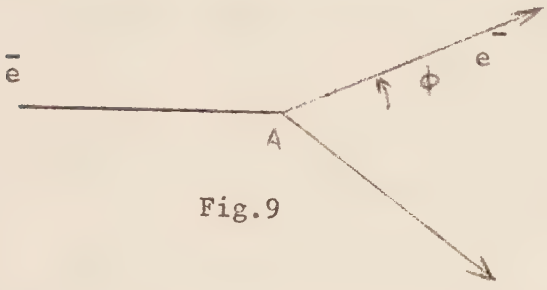


Fig.9

Avec une énergie cinétique suffisante E, les électrons du microscope électronique peuvent fournir l'énergie nécessaire pour qu'un atome en position d'équilibre soit éjecté de son site. Une paire lacune interstitiel est alors créée. Cet effet est mis en évidence dans les matériaux cristallins par la condensation de ces défauts en boucles de dislocations, cavités ou tétraèdres de défauts d'empilement.

L'énergie transférée $E_t$ dans une telle interaction est donnée par la relation :

$$E_t = \frac{2}{M_o c^2} E\,(E + 2m_o c^2)\,\sin^2\phi/2 \qquad (29)$$

où - E est l'énergie cinétique de l'électron incident
- $M_o c^2$ est l'énergie au repos de l'atome cible
- $\phi$ est l'angle de déviation de l'électron incident.

Pour qu'un atome puisse être éjecté il faut que l'énergie $E_t$ qui lui est transférée soit supérieure à une énergie de seuil $E_c$.
Les angles minimum selon lesquels les électrons sont déviés, sont donnés sur le tableau suivant :

| $\phi$ : | $E_c$ : | 1 MV : | 2 MV : | 3 MV |
|---|---|---|---|---|
| Cuivre | 19 eV | 68° | 37° | 26° |
| Aluminium | 16 eV | 39° | 24° | 16° |

On voit donc que la diffusion des électrons liée aux interactions inélastiques de ce type se fait à très grand angle. Elle participera certainement à l'atténuation du faisceau incident.

Toutefois les calculs effectués par Makin[62] à partir de la formule de Mackinley-Feshbach [63] montrent que la section efficace de défaut d'irradiation reste très faible comparée aux autres sections efficaces. Elle est inférieure à 500 barns pour le cuivre dans la suite de ce travail.

## 2 - Interaction électron-électron

a) plasmon

L'électron incident interagit avec le gaz d'électrons libres de l'échantillon métallique. Les électrons qui participent aux oscillations de plasma sont délocalisés dans le cristal et le potentiel imaginaire qui rend compte de cette interaction est essentiellement constant dans le cristal puisqu'il ne dépend pas de la position des atomes.

$$V'(r)\ \text{plasmon} = V'_o$$

Les énergies mises en jeu dans de tels processus sont de l'ordre d'une dizaine d'électrons volt.

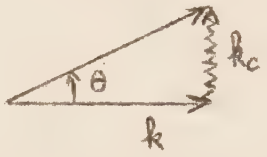
Les angles de diffusion sont faibles car d'une part la section efficace différentielle de transition est proportionnelle à :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \propto \frac{1}{\theta^2+\theta_E^2} \quad (30) \qquad \text{où} \qquad \theta_E = \frac{\Delta E}{2E} \simeq 10^{-4} \text{ à } 100 \text{ kV}$$

$\Delta E$ perte d'énergie par plasmon

$E$ énergie de l'électron incident

$\theta$ angle de déviation.




D'autre part, les plasmons ne peuvent être excités qu'avec des longueurs d'ondes supérieures à la distance moyenne interatomique. Ceci implique un vecteur d'onde $k_c$ de coupure au-delà duquel il n'y aura plus de plasmon excité.

$$k_c = \frac{\pi}{d_e}$$

où $d_e$ est la distance moyenne entre deux électrons dans le solide.

L'angle de diffusion maximum dans un processus à un plasmon est donc donné par [65] :

$$\theta_c = \frac{k_c}{k} = \frac{\lambda}{2d_e}$$

Il diminue quand la tension augmente mais sa relation avec les angles de Bragg est indépendante de la tension.

$$\frac{\theta_c}{\theta_B} = \frac{d_{hkl}}{d_e} \qquad (31)$$

On peut estimer $d_e$ en admettant qu'elle est égale à la distance moyenne entre deux atomes divisée par le nombre d'électrons $n$ qui participent aux oscillations de plasma.

$$\frac{\theta_c}{\theta_B} = \frac{n\sqrt{2}}{\sqrt{h^2+k^2+l^2}}$$

où h k l caractérise la réflexion considérée.

$\theta_c$ est en général de l'ordre de grandeur de $\theta_B$

Howie (66) a montré qu'une diffusion inélastique par plasmons, surtout de faibles angles, affectait toutes les nappes de la surface de dispersion avec une égale probabilité. Il justifie ainsi la contribution $V'_o$ au potentiel imaginaire. Ce point a été vérifié expérimentalement par El Hili (56) à l'aide du filtre de vitesse de Castaing et Henry (67)

Dans le cas où l'épaisseur traversée par les électrons n'est pas trop grande devant le libre parcours moyen associé aux interactions par plasmons, cette remarque permet d'admettre que les électrons qui ont subi de tels processus restent cohérents et ne participent donc pas au phénomène d'absorption.

Les calculs de contrastes en lames minces utilisent toujours cette hypothèse qui est en général bien vérifiée (44,68)

Les électrons profonds ne participent à l'absorption que de façon négligeable (69). A haute tension (70) les libres parcours moyens de ces processus ont été déterminés pour le seuil K de l'aluminium. Ils sont de l'ordre de 300 µ à 1 MV et sont donc très grands devant les épaisseurs d'échantillon classiquement utilisées Pour la raie K du carbone, le libre parcours moyen est de l'ordre de 25 microns à 1 MV.Ces processus ne sont donc pas très importants dans le cadre de notre problème de la bande de valence (électrons faiblement liés). La diffusion par excitation individuelle d'électrons est un phénomène délocalisé. Il lui correspond un potentiel imaginaire dont la transformée de Fourier est :

$$V'(\vec{r}) = V'_o + \sum_{\vec{g}} V'_g \, e^{i\vec{g}\vec{r}} \qquad (32)$$

où $V'_g$ est une fonction fortement décroissante de g (68, 71, 72)

Les interactions électron incident - électrons du continuum. ont une section efficace différentielle analogue à celle des plasmons. Pines (73), a montré que pour les diffusions aux petits angles les interactions par plasmons étaient nettement prépondérantes devant celles par électrons individuels.
Ces interactions se font à grands angles car il n'y a pas, contrairement aux plasmons, de condition de coupure et leur participation à l'absorption pourra être ainsi notable.

Remarques :

- les phénomènes d'interaction inélastique électron-électron

sont peu localisés. Le potentiel imaginaire qui leur est associé est donc peu sensible aux effets de température.

- Les diffusions inélastiques par les processus électroniques sont importantes aux petits angles (loi en $1/\theta^2 + \theta_E^2$). Pour les angles très faibles, elles conservent correctement la cohérence entre les champs d'ondes élastiques et inélastiques. La limitation de l'ouverture du faisceau par un diaphragme de contraste aura donc un effet très sensible sur l'absorption . Pour les excitations individuelles , ce point a été vérifié par Smith et Burge [74] et D. Renard dans l'or[68].

3 - Freinage par rayonnement -

Une autre perte d'énergie qui peut devenir très importante pour les métaux lourds à très haute tension est le "BREMSSTRAHLUNG". L'électron incident perd de l'énergie directement par rayonnement. L'origine de ce rayonnement se comprend en électromagnétisme classique : une cherge en mouvement d'accélération $\gamma$ rayonne de l'énergie proportionnellement à $\gamma^2$ . Pour le passage d'une particule de charge e, de masse m, au voisinage d'une particule de charge Ze , l'accélération est proportionnelle à $\frac{Ze^2}{m}$ et l'intensité rayonnée à $\frac{Z^2e^4}{m^2}$ . Cet effet n'est pas important dans le cas de l'aluminium et du cuivre quand les tensions accélératrices des électrons n'éxcèdent pas 3 MV. Dans le cas du cuivre, ce processus est responsable d'environ 10 % des pertes d'énergie à 3 MV

4 - Diffusion par phonons --

Les interactions électron phonons jouent un rôle très important dans la théorie dynamique des échantillons épais. Du fait de la température les atomes du cristal vibrent autour de leur position d'équilibre. L'excitation d'un phonon modifie l'état de vibration du cristal et fait diffuser l'électron hors de sa trajectoire élastique.

Hall et Hirsch [76] ont utilisé un modèle d'Finstein pour traiter la diffusion thermique dans un cristal réel. Le modèle classique considère que les phonons n'ont pas leurs vecteurs d'ondes quantifiés. C'est une hypothèse de haute température. Ils calculent alors l'atténuation de l'intensité d'un champ d'onde dans une théorie

à deux ondes,en admettant que les électrons ainsi diffusés inélastiquement -hypothèse cinématique- ne sont plus traités par la théorie dynamique.

Ils donnent la relation qui définit la composante de Fourier du potentiel imaginaire qui rend compte phénoménologiquement de l'absorption :

$$(33\text{-a}) \qquad V'_g \propto \frac{m}{k_o} \int \frac{(Z-f(S))\,(Z-f(S-g))}{S^2(S-g)^2} \left(e^{-M_g}-e^{-(M_S+M_{S-g})}\right) d\sigma$$

où $\vec{S}$ est le vecteur diffusion (Fig.11 )

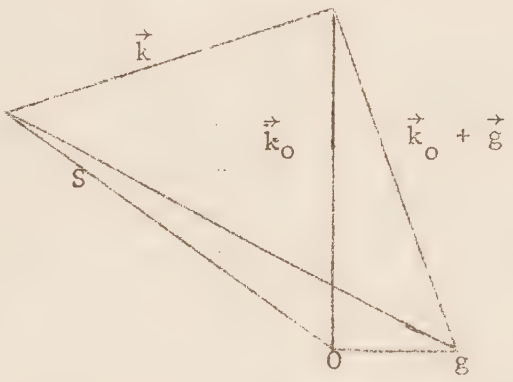



Figure 11.

$M_g$ est le terme de correction de Debye Waller pour la température définie par la relation (5).

$f(S)$ est le facteur de diffusion donné pour les rayons X ; on a

$$f(o) = Z.$$

D'une façon générale, la décroissance d'une telle fonction est en première approximation indépendante du corps considéré. Ce point se vérifie sur les courbes de facteurs de diffusion donnée sur la figure (12). En mettant $Z^2$ en facteur :

$$U'_g \propto Z^2 \int \frac{\left(1-\frac{f(S)}{Z}\right)\left(1-\frac{f(S-g)}{Z}\right)}{S^2\,(S-g)^2} \left(e^{-M_g}-e^{-(M_S+M_{S-g})}\right) d\sigma \qquad (33\text{-b})$$

L'intégrale est d'après la remarque précédente indépendante du corps considéré. Ainsi V'g est proportionnel au carré du numéro atomique.

Par ces raisonnements on voit que les interactions par phonons seront dans le cas du cuivre 5 fois plus importantes que pour l'aluminium.

Ces résultats sont conformes à ceux donnés par Whelan [71] et Radi [72]

De plus d'après les calculs effectués par Humphreys et

Hirsch [77] qui extrapolent ceux menés par Hall et Hirsch [76], il est possible de montrer que les potentiels $V'^{phonons}_{g}$ peuvent se mettre sous la forme :

$$V'_g = V'_o e^{-\alpha g^2} \qquad (34)$$

où $\alpha$ est une constante qui dépend surtout de la température.

Contrairement aux diffusions inélastiques par processus électronique, la diffusion thermique est une diffusion à grand angle. Sa participation à l'absorption sera donc relativement indépendante de la taille du diaphragme de contraste.

## 5 - Conclusion

Nous avons remarqué que les interactions électroniques étaient en général peu localisées et qu'elles laissaient à l'électron qui les subissait une bonne cohérence avec le faisceau incident [78,79] Les phénomènes d'absorption qui leur sont associés, sont peu importants à faible épaisseur. Cependant pour les fortes épaisseurs ils peuvent jouer un grand rôle dans l'absorption normale.

Les diffusions thermiques très localisées sur les atomes fournissent l'essentiel de l'absorption classiquement appelée anormale.

Nous pouvons résumer ces résultats sur le tableau suivant pour les couches minces :

TABLEAU XIII

| | Conservation contraste | Participation absorption | Forme potentiel Remarques |
|---|---|---|---|
| Irradiation | Nulle | FAIBLE | V'(r) très faible |
| plasmons | Bonne | FAIBLE | $v'_o$ fonction du diaphragme |
| Electron de valence | Bonne | FAIBLE | $V'_o$ |
| Electron profond | Moyenne ? | FAIBLE | V'(r) très faible |
| phonon | Faible | FORTE | V'(r) localisé, fort |

## III - Etude de la pénétration

Dans la première partie du chapitre les phénomènes inélastiques responsables de l'atténuation des champs d'ondes ont été rapidement rappelés ainsi que la façon d'en tenir compte dans le traitement de la théorie dynamique. Nous allons étudier, dans ce paragraphe, le problème de la pénétration associé à la propagation des champs d'ondes dans le cristal et définir en premier lieu la fonction de pénétration.

### 1 - Intensité transmise -

L'intensité transmise dans la direction du faisceau incident est donnée par la relation générale :

$$I_o(z) = I_o \times \sum_i \{(c_o^{(i)})^2 \; e^{i \vec{k}_o^{(i)} z} \; e^{-\mu^{(i)} z}\} \times C.C. \quad (35\ a)$$

- z est l'épaisseur d'échantillon traversée.
- chaque champ d'onde se propage indépendamment des autres. Chacun aura un coefficient d'atténuation propre $\mu^{(i)}$.

Cette relation est d'utilisation générale assez délicate car à haute tension le nombre de champs d'ondes participant de façon non négligeable peut devenir très important. Cependant la valeur qui nous intéresse est l'intensité obtenue à la sortie d'échantillons très épais. Dans ce cas, il n'y a plus en général qu'un seul champ d'ondes qui fournit une contribution importante à l'intensité. C'est celui qui a à la fois un coefficient d'atténuation minimum et un coefficient d'excitation important. Ainsi l'intensité élastique recueillie à la sortie d'un échantillon très épais se mettra sous la forme :

$$I_o(z) = I_o (c_o^{(i)})^4 \; e^{-2\mu^{(i)} z} \quad (35\ b)$$

- $I_o$ intensité du faisceau incident

### 2 - Contraste de pénétration -

Pour étudier la pénétration nous avons utilisé comme pour les tensions critiques des échantillons en forme de coin courbé. Idéalement cette forme d'échantillon permet d'étudier la pénétration en fonction de l'épaisseur (coin) et de l'orientation (l'échantillon est courbé).

Il est donc possible de définir un contraste associé à l'épaisseur par :

$$c(z) = \frac{I_M(z) - I_m(z)}{I_M(z) + I_m(z)}$$

- $I_M(z)$ est l'intensité correspondant à l'orientation considérée.

- $I_m(z)$ est l'intensité minimale correspondant à l'orientation de mauvaise pénétration.

Aux fortes épaisseurs les intensités traitées élastiquement sont telles que $I_m \ll I_M$.
En effet si on étudie un tel contraste avec les ondes uniquement élastiques, moins absorbées, nous aurons la courbe c(z) donnée par la figure (12) quelle que soit l'énergie.

Figure 12.

Cette courbe semble indiquer comme nous l'avons dit dans l'introduction de ce chapitre, qu'il y aura toujours un contraste quelle que soit l'épaisseur z du cristal traversée. Ce comportement n'est pas physique, il faut donc considérer la présence d'un fond continu pour rendre compte de la pénétration :

$$I_M = I_{Fc} + I_M^{Elastique}$$

$$I_m = I_{Fc} + I_m^{Elastique}$$

la fonction contraste s'écrit alors :

$$c(z) = \frac{I_M^{Elastique}}{2I_{Fc} + I_M^{Elastique}}$$

en négligeant $I_m^{Elastique}$.

3 - Critère de Pénétration

A haute tension, pour qu'un contraste d'intensité soit discernable sur l'écran d'observation il faut que la fonction c(z) qui lui est associée soit supérieure à 0,2 sur les plaques photographiques. En effet les contrastes de plus faibles valeurs ne

sont pas observables car les écrans d'observation ont d'une part un rendement faible à haute tension et des phénomènes de diffusions parasites qui les atténuent d'autre part. Il n'est possible d'effectuer des travaux de métallurgie classique que s 'il y a sur l'écran d'observation un minimum de détails visibles.

Ainsi en prenant : $$c(z) = 0,2$$

$$c(z) = \frac{1}{1+2\,\frac{I_{Fc}}{I_M^{E-}}}$$

on peut alors écrire la relation suivante :

$$I_{Fc} = 2\, I_M^{Elastique}$$

Nous avions défini auparavant :

$$I_M^{Elastique} = I_o (c_o^i)^4\, e^{-2\mu i z}$$

Ainsi la limite de pénétration $Z_M$ est définie par :

$$(c_o^{(i)})^4\, e^{-2\mu i Z_M} = 0,5\, I_{Fc}$$

Le Logarithme Néperien de cette relation donne :

$$2\mu_i Z_m + \text{Log } 0.5\, I_{Fc} = 4 \text{ Log } c_o^{(i)}$$

ou $$Z_M = \left(-\text{Log}\frac{I_{Fc}}{2} + 4 \text{ Log } c_o^{(i)}\right) \frac{1}{2\mu^{(i)}} \qquad (36)$$

$Z_M$ représente l'épaisseur maximale d'échantillon traversée par un faisceau d'électrons qui transmet encore une information.

Dans cette relation deux quantités sont à définir plus précisément $I_{Fc}$ et $\mu^{(i)}$

En fait l'épaisseur que peut traverser un électron qui conserve une information utilisable est fonction de la nature et de la position du défaut à étudier. Ainsi les défauts d'irradiation ne sont visibles que pour de faibles épaisseurs. A l'opposé de gros défauts comme les fibres de Béryllium (cf plus loin) (Planche XVII b) peuvent

être mis en évidence pour des épaisseurs beaucoup plus grandes.

Les défauts situés au voisinage de la face d'entrée d'un échantillon seront invisibles si les intensités associées à un contour d'extinction sont uniformes. Par contre si les défauts sont près de la face de sortie de l'échantillon, les transitions interbandes qu'ils entraînent peuvent donner lieu à un contraste, même quand le contraste d'orientation est devenu nul.

4 - Fond continu -

Le fond continu est constitué par les électrons qui ont subi plusieurs interactions inélastiques et qui repassent par le diaphragme de contraste . Ces électrons participent donc à la formation de l'image. Ils perdent leur cohérence au fur-et-à-mesure des divers processus inélastiques qu'ils subissent. De plus, leur distribution en énergie a une largeur proportionnelle à l'épaisseur d'échantillon traversée. Ce dernier point entraîne un flou de l'image (aberration chromatique) et ainsi une perte d'information.

L'intensité du fond continu est alors :

$$I_{Fc} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\theta_o} I(\theta,\phi) \sin\theta \, d\theta d\phi$$

$\theta_o$ est l'angle d'ouverture du faisceau que limite le diaphragme de contraste.

$I(\theta,\phi)$ est la répartition spatiale du fond continu.

Ce diaphragme ayant une taille limitée nous considérons qu'il est raisonnable de prendre :

$$I(\theta,\phi) = J$$

dans tout le diaphragme.

$I(\tau,\phi)$ peut être relié à l'intensité $I_o$ par la relation :

$$\int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} I(\theta,\phi) \sin\theta d\theta d\phi = I_o$$

En effet, dans le cas qui nous intéresse l'intensité $I_o$ du faisceau incident est presque totalement diffusée inélastiquement aux fortes épaisseurs qui nous intéressent ici.

Au lieu de rechercher une forme de $I(\theta,\phi)$ nous définissons une intensité isotrope équivalente à l'intensité passant par le diaphragme de contraste et telle que : $J \int_0^{2\pi} \int_0^{\theta_c} \sin\theta d\theta d\phi = I_o$

$\theta_c$ est l'angle au-delà duquel $J = o$

Le fond continu récupéré dans l'image sera donc donné par :

$$I_{Fc} = I_o \frac{\sin^2 \theta_o}{\sin^2 c}$$

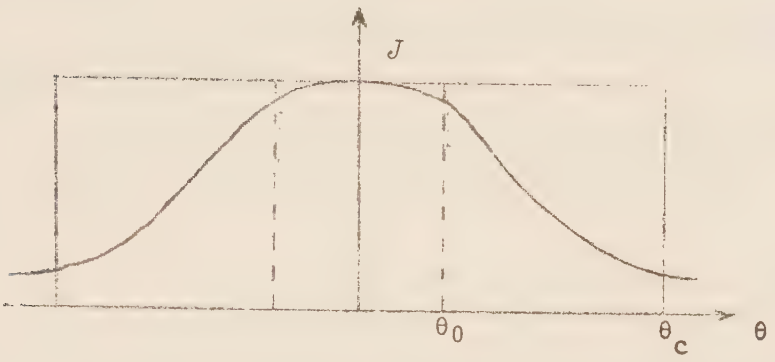
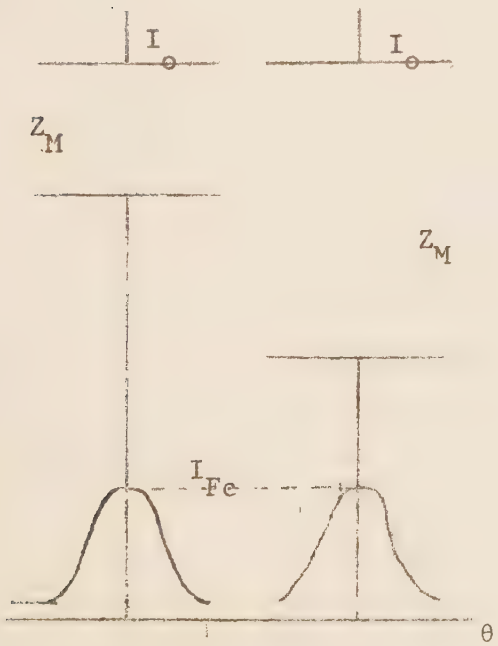



Figure 13.

L'angle d'ouverture $\theta_o$ est limité par la taille du diaphragme de contraste. Ayroles et Coll[26] ont montré qu'en première approximation cet angle est, pour un diaphragme donné, indépendant de la tension accélératrice des électrons à cause des propriétés optiques des lentilles que nous utilisons.

L'angle de coupure $\theta_c$ du fond continu que nous avons défini plus haut a été pris indépendant de la tension. L'hypothèse que nous faisons est que la répartition spatiale du fond continu à la limite des fortes épaisseurs n'évolue que peu entre 100 kV et 3 MV. La portée de cette hypothèse est d'ailleurs atténuée par le fait qu'elle concerne une fonction logarithme.




Ainsi pour l'épaisseur maximale utilisée $Z_M$ $I_{Fc}$ sera pris indépendant de la tension accélératrice des électrons.
Nous avons utilisé comme valeur de :

$$\frac{I_{Fc}}{2I_o} = \frac{1}{1000}$$

qui correspondent aux valeurs utilisées en particulier par Humphreys[80].

Figure 14.

## IV - COEFFICIENT D'ATTENUATION DES CHAMPS D'ONDES

Dans la relation définissant l'épaisseur maximale d'échantillons traversée par un faisceau d'électron nous avons introduit le paramètre $\mu^{(i)}$ coefficient d'atténuation du ième champ d'ondes. Nous avons été amenés à considérer de tels paramètres pour deux raisons :

- l'épaisseur traversée par des électrons porteurs d'information est limitée.
- les contrastes expérimentaux ne sont pas explicables par la théorie dynamique des électrons uniquement diffusés élastiquement.

Il faut considérer que les électrons subissent des diffusions non élastiques suivant des angles qui peuvent être supérieurs à l'angle d'ouverture de l'objectif. Ils sont alors arrêtés par le diaphragme de contraste et ne participent plus à la formation de l'image. On parle alors d'absorption. Nous allons introduire ces coefficients par deux approches différentes.

### 1 - Méthode des Perturbations -

Molière [60] a montré que l'on pouvait tenir compte de l'absorption en superposant au potentiel cristallin un terme imaginaire de même période que le réseau cristallin. Yoshioka [50] a justifié ce point en montrant qu'en première approximation les fonctions d'ondes élastiques pouvaient être considérées comme solution de l'équation fondamentale dans laquelle V(r) est complexe :

$$V(r) + iV'(r) = \sum_g (Vg + iV'g)e^{i\vec{g}.\vec{r}}$$

V'(r) aux températures usuelles reste faible devant V(r) et peut être considéré comme une perturbation du potentiel élastique. Comme les fonctions propres de l'Hamiltonien de propagation dans le cristal sont les champs d'ondes $\psi_i$ la correction des valeurs propres est donnée par la relation :

$$\delta k_i = \frac{1}{2k_o}\int \psi_i \, V'(r) \, \psi_i^* dr$$

dans cette relation on peut remplacer $\psi_i$ par sa définition.

Phénoménologiquement iV'(r) est imaginaire pur et la correction sur les valeurs propres $k^{(i)}$ correspond donc à un terme d'amortissement que l'on nomme $\mu^{(i)}$ ;

$$\mu^{(i)} = \frac{1}{2k_o} \sum_g \sum_h c_g^{(i)} \, c_h^{(i)} \int \frac{2m}{h^2} V'(r) e^{i(\vec{g}-\vec{h})\vec{r}} d_3r \qquad (37)$$

ou $\vec{g}$ et $\vec{h}$ sont des vecteurs du réseau réciproque.

$$\mu^{(i)} = \frac{1}{2k_o} \sum_{gh} c_g^{(i)} c_h^{(i)} V'_{g-h} \frac{2m}{h^2} \qquad (38)$$

avec $V'_g = V'(r)\, e^{i(\vec{g})\vec{r}}\, d_3 r$

le champ d'ondes $\psi_i$ s'écrit alors dans le cristal :

$$\psi_i(\vec{r}) = \{\sum_g c_g^{(i)} e^{i\vec{g}.\vec{r}}\} e^{(i\vec{k}^{(i)} - \vec{\mu}^{(i)})\vec{r}} \qquad (39)$$

Ainsi la théorie des perturbations permet de montrer que chaque champ d'onde a son propre coefficient d'atténuation. Nous allons maintenant introduire ce coefficient de façon plus physique.

2- Méthode de l'occupation spatiale (66)

Nous avons remarqué dans le premier chapitre que le module carré des champs d'ondes donné par

$$\psi_i \psi_i^* (x) = \sum_{gh} c_g^{(i)} c_h^{(i)} e^{i(g-h)x}$$

restait stationnaire dans la direction perpendiculaire aux plans réflecteurs. Ils sont donc canalisés par ces plans et la propagation efficace des champs d'ondes se fait parallèlement aux plans réflecteurs.

Ce module carré que nous appelons occupation spatiale peut être interprété comme la probabilité de trouver un électron du ième champ d'onde à une distance x de plan réflecteur. Il est indépendant de z , variable de propagation.

Si de plus nous définissons $V(x)$ comme la probabilité par unité de longueur qu'a un électron d'avoir une interaction inélastique avec le cristal qui l'élimine du faisceau incident, il est possible de définir un coefficient d'atténuation du champ d'onde i par

$$d\mu(x) = \psi_i(x)\psi_i^*(x)\, V(x)\, dx$$

et en intégrant sur toute une période :

$$\mu^{(i)} = \int \psi_i \psi_i^*\, V(x)\, dx$$

qui s'écrit d'après la définition des $\psi_i(x)$

$$\mu^{(i)} = \sum_{gh} c_g^{(i)} c_h^{(i)} V_{g-h}$$

avec $V_{g-h} = \int V(x) e^{i(g-h)x}\, dx$

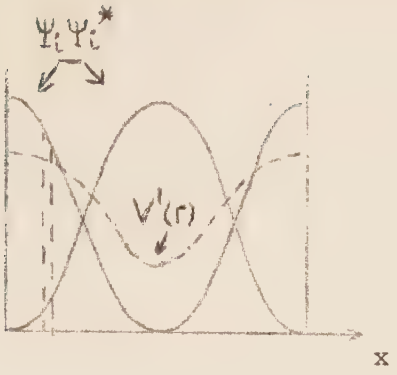



Figure 15.

On peut remarquer ainsi que suivant la forme de l'occupation spatiale les champs d'ondes auront une interaction inélastique plus ou moins grande avec le cristal (66).

En introduisant donc une fonction probabilité d'interaction inélastique $V(x)$ nous retrouvons une relation identique à celle donnée par la théorie des perturbations. La relation entre les deux formulations est telle que :

$$V_g = \frac{1}{k_o} V'_g \qquad (37)$$

Cette similitude entre les deux relations est normale car les hypothèses faites sont très analogues. La fonction $V(x)$, comme le potentiel $V'(r)$ ne modifient pas les composantes des fonctions propres du système, mais seulement leur coefficient d'excitation. C'est un résultat de la théorie des perturbations.

Dans tous les calculs les électrons diffusés de façon incohérente ne sont plus traités par la théorie dynamique et quels que soient les processus futurs auxquels ils seront soumis ils ne participeront à la formation de l'image que dans le fond continu.

3 - Variation de $\mu^{(i)}$ avec l'énergie

Cette variation a été théoriquement établie par Howie (81) qui a démontré que les $\mu^{(i)}$ avaient une loi de variation en $\frac{1}{V^2}$.

Cette relation peut se montrer en deux temps :

D'après la relation (37)

$$\mu^{(i)} \propto \frac{m}{k} \sum_g \sum_h c_g^{(i)} c_h^{(i)} V'_{g-h}$$

$V'_g$ est d'après les définitions de ses différentes composantes aussi proportionnel à $\frac{m}{k}$. Ceci peut être en particulier vérifié sur la relation (33)

donc $$\mu^{(i)} \propto \frac{m^2}{k^2}$$

Or $\frac{m}{k}$ est proportionnel à $\frac{c}{v}$

Ainsi $\mu^{(i)} \propto (\frac{c}{v})^2 \sum_g \sum_h c_g^{(i)} c_h^{(i)} V'_{g-h}$ (40)

Cette relation montre qu'il y aura deux variations indépendantes du coefficient d'atténuation en fonction de l'énergie.

a) Forme explicite $\mu^{(i)} \propto (\frac{c}{v})^2$

Cette variation ne sera importante que pour le passage des basses tensions (<100 kV) aux tensions de l'ordre de 500 kV.

Sur le tableau suivant

TABLEAU XIV

| E | 100 kV | 500 kV | 1 MV | 3 MV |
|---|---|---|---|---|
| $(\frac{c}{v})^2$ | 3.27 | 1.33 | 1.12 | 1.02 |

nous pouvons remarquer que la variation de $\mu^{(i)}$ en fonction de $(\frac{c}{v})^2$ devient négligeable quand on passe de 1 MV à 3MV.

b) Forme implicite

Les $c_g^{(i)}$ varient en fonction de l'énergie et il est possible de présenter les $\mu^{(i)}$ sous une autre forme :

$$\mu^{(i)} \propto \sum_g A_g V'_g \qquad (41)$$

avec $A_g = \sum_h c_h^{(i)} c_{h-g}^{(i)}$

Les $A_g$ sont des fonctions de l'énergie comme le montrent les courbes appliquées au cuivre (Planche XII b,d) et à l'aluminium (Planche XX) dans les conditions d'orientation particulières

Nous donnons sur la planche (X) la variation des $\mu^{(i)}$ en fonction de l'orientation pour la réflexion (111) du cuivre à trois tensions différentes. (courbes a, d, g).

Il est intéressant de constater que la différence entre le maximum et le minimum du coefficient d'atténuation de chaque champ d'onde est une fonction décroissante de l'énergie. On peut remarquer ainsi que pour le champ d'onde (2) $\mu^{(2)}$ en première approximation est indépendant de l'orientation à 3Mv. De même les variations des coefficients $\mu^{(3)}$ $\mu^{(4)}$ sont aussi faibles et leurs valeurs tendent toutes vers une même limite.

Ainsi à très haute tension les effets de pénétration pour les réflexions de bas indices (111) du cuivre dépendent moins de l'occupation spatiale.

4 - Variation de $\mu^{(i)}$ avec l'orientation. (Planche (X) )

D'après leur relation de définition les $\mu^{(i)}$ ont comme l'ont fait remarquer Metherell et Fischer[82] la période de la surface de dispersion (Planche (X, a,d,g,).
A la périodicité de la surface de dispersion on peut associer celle des composantes des champs d'ondes qui sont reliées entre elles par les relations :

$$c_g^{(i)}(k_x) = c_{-g}^{(i)}(-k_x)$$

qui exprime que les solutions sont symétriques par rapport à l'origine du réseau réciproque

$$c_g^{(i)}(k_x) = c_{g+g'}^{(i)}(k_x+g')$$

Puisque ces coefficients ont la périodicité du réseau. Ainsi, d'après leur définition (40), les $\mu^{(i)}$ vérifient les relations :

$$\mu^{(i)}(k_x) = \mu^{(i)}(-k_x)$$

$$\mu^{(i)}(k_x + g) = \mu^{(i)}(k_x)$$

Les valeurs minimum et maximum des coefficients sont obtenues lorsque le faisceau incident est en position de Bragg par rapport au cristal. En effet, dans ces conditions, les occupations spatiales des champs d'ondes ne sont pas uniformes comme le montrent les trois courbes réalisées pour la réflexion (111) du cuivre à 100 kV pour trois orientations différentes du faisceau incident (Planche XI a, b, c).

On peut noter sur ces courbes que le champ d'onde n°1 sera toujours très absorbé car son occupation spatiale est centrée sur les plans réflecteurs quelle que soit l'orientation du faisceau. En effet, les composantes de ce champ d'ondes sont toutes positives et tous les $A_g$ sont donc positifs.

$$\mu^{(1)} = \sum_g A_g V'_g \qquad (41)$$

aura une valeur toujours grande devant les autres $\mu^{(i)}$. Dans la suite de cette étude, nous ne parlerons plus de ce champ d'onde qui

sera toujours absorbé pour participer à la pénétration utile en forte épaisseur.

En dehors des orientations correspondant aux réflexions de Bragg, les effets d'absorption anormale s'atténuent. Les occupations spatiales des champs d'ondes deviennent plus uniformes comme le montre la courbe b) de la planche XI.

Seules les valeurs minimales des coefficients d'atténuation d'un champ d'onde seront intéressantes pour la suite. En effet, l'intensité associée à cette orientation sera portée plus profondément dans l'échantillon avec une valeur non négligeable.

5 - Remarque sur $V'(x)$ -

Nous pouvons remarquer que l'effet d'absorption anormale sur les champs d'ondes sera d'autant plus fort que l'indice des plans réflecteurs sera plus faible.

α - Réflexion de type (111)

La distance entre plans est maximale. Nous représentons sur la figure (16) d'une part, la variation entre deux plans réflecteurs de $V(x)$ et les occupations spatiales $\psi_1\psi_1^*$ et $\psi_2\psi_2^*$ pour la position symétrique de la rangée systématique (111) du cuivre à une tension de 500kV.

Nous pouvons remarquer sur cette figure que l'absorption sur le champ d'onde (1) définie par

$$\mu_1^{(1)} \propto \int \psi_1\psi_1^*(r)\ V(x)dx$$

aura une très forte valeur parce que le recouvrement des deux fonctions est important. Au contraire l'absorption du champ d'onde 3 qui a son maximum d'occupation spatiale entre les plans réflecteurs sera faible.

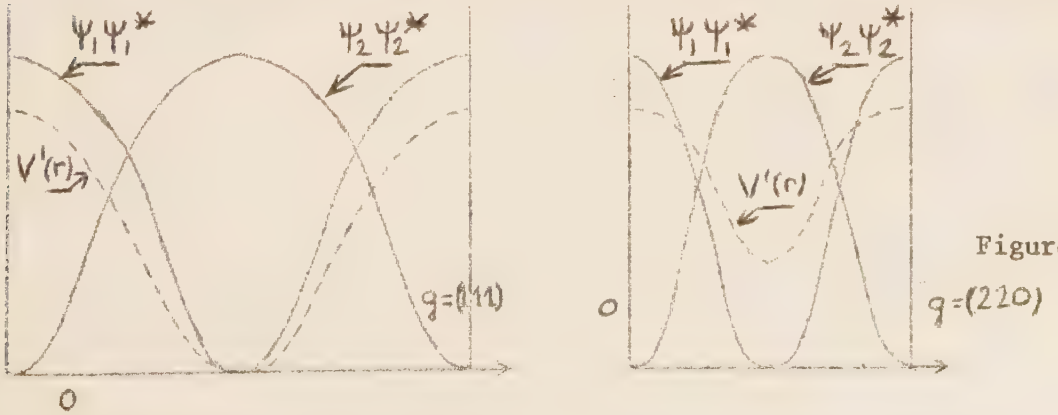



Figure 16.

β - Réflexion du type (220) -

La distance entre ces plans est $\sqrt{3/8}$ fois plus faible que pour les plans (111). Les champs d'ondes ont des variations périodi-

ques entre les plans réflecteurs qui sont analogues au cas précédent. Par contre, $V'(x)$ a la même loi de décroissance que pour la réflexion (111). Le coefficient $\mu^{(1)}(220)$ sera donc peu différent à priori de $\mu^{(1)}(111)$ alors que le champ d'onde (3) interagira plus avec les atomes du plan réflecteur, le recouvrement des fonctions et de $V'(x)$ étant plus important comme le montre la figure (16)

Ainsi nous voyons que les coefficients d'atténuation $\mu^{(3)}$ associés aux réflexions (111) et (220) sont assez différents et que l'effet de canalisation qui pouvait exister pour la réflexion (111) à des tensions de l'ordre de 1.5 MV sera moins marqué même à des tensions supérieures pour la réflexion (220) , car les effets d'absorption anormaux sont plus faibles que pour 111. Elle sera de même plus faible pour les matériaux légers que pour les matériaux lourds.

## 6 Utilisation des propriétés des champs d'ondes pour l'étude de la pénétration

Sur la planche (X) nous avons représenté les coefficients d'excitation et d'atténuation des champs d'ondes 2,3,et 4 dans du cuivre. A côté se trouvent pour une épaisseur constante, les courbes d'intensité en fonction de l'orientation (c, f, i) (Rocking-Curves).

a) 100 kV (X, a,b,c,).

A la position symétrique du faisceau incident correspond une mauvaise transmission de l'intensité. Le champ d'onde 1 non repré sur les courbes (a,d,g) est à la fois très excité et très absorbé. Seul le champ d'onde peut donner une participation pour des épaisseurs assez importantes mais elle est faible ( $(c_o^{(2)})^2 = 0,25$) et ce champ d'onde est rapidement absorbé puisque $\mu^{(2)}$ est maximal pour cette orientation (a, b).

Au contraire en position de Bragg du premier ordre ($(c_o^{(2)})^2 \simeq 0,5$), $\mu^{(2)}$ est minimum et l'intensité transmise y sera donc optimale (b).

En position cinématique, l'excitation du second champ d'ondes tend vers un maximum ( $(c_o^{(2)})^2 = 0,8$) et il lui correspond donc une bonne pénétration.

b) 1 MV - (X,d,e,f,)

Contrairement à 100 kV la position symétrique devient une très bonne orientation de pénétration (courbe f). Nous pouvons

remarquer que l'excitation du champ d'onde (3) est importante ( $(c_o^{(3)})^2 = 0,5$) et surtout que $\mu^{(3)}$ y est minimum (courbe d).

En position de Bragg du premier ordre l'intensité transmise devient faible. Le champ d'onde (2) très absorbé, ne transmet plus d'intensité aux fortes épaisseurs.

C'est le champs d'onde (3) qui fournira de nouveau l'intensité pour les orientations de Bragg du second et troisième ordre.

c) - 3 MV (Planche X , g, h, i).

$c_o^{(3)}$ est moins fort à 3 MV qu'à 1 MV, et $\mu^{(3)}$ est plus important. La transmission en position symétrique sera donc moins bonne qu'à 1 MV. Au contraire en position de Bragg du premier ordre le champ d'ondes (4) devient très excité ($(c_o^{(4)})^2 = 0,5$) et le coefficient d'atténuation y est minimal. Il existe donc de nouveau une bonne transmission de l'intensité.

Nous avons ainsi montré que par des raisonnements très simples, il était possible grâce à la propagation des champs d'ondes d'expliquer les orientations de bonne pénétration.

## V - APPLICATION A L'ETUDE DE LA PENETRATION UTILE DANS LE CUIVRE ET L'ALUMINIUM

### 1) Etude de la pénétration dans le cuivre

Le cuivre est un matériau de masse atomique moyenne. Les effets de contrastes à basse tension sont classiques. A haute tension il existe des effets de canalisation des électrons spécifiques des métaux lourds comme l'or.

Nous étudions la variation de pénétration en fonction de la tension accélératrice des électrons pour deux orientations particulières du faisceau d'électrons : la position symétrique du faisceau incident et la position de Bragg du premier ordre. Dans ces deux cas, les coefficients d'atténuation des champs d'ondes sont soit supérieurs soit inférieurs à ceux des orientations cinématiques. Et comme nous l'avons déjà dit, seuls les champs d'ondes de coefficient d'atténuation minimal fournissent une intensité aux fortes épaisseurs.

On peut noter dès à présent un résultat commun aux deux orientations. Quand la tension accélératrice des électrons passe de 0,1 à 0,5 MV , la pénétration augmente dans les deux cas d'un rapport supérieur à deux. L'amélioration est dûe à la variation rapide du rapport $(\frac{c}{v})^2$

entre 0,1 MV et 0,5 MV. Au-delà , la variation de la pénétration sera surtout fonction de l'évolution avec la tension de l'occupation spatiale.

a) Forme de V'(r) -

Pour l'étude de la fonction de pénétration, nous avons utilisé un potentiel imaginaire dans lequel les diffusions inélastiques par interaction électronique sont négligées.

En effet, le libre parcours moyen associé aux interactions par plasmons peut être calculé à partir de la formule de Ashley et et Ritchie [83]

$$L = \frac{e^2 Ep}{2\hbar^2 c^2 \beta^2} \left( \text{Log} \left( \frac{k_c \hbar c}{Ep} \right)^2 + \text{Log}\beta^2 \right) \qquad (42)$$

Ep = 11 eV

Il vaut environ 5000 Å à 1 MV. Les épaisseurs maximum traversées sont donc de l'ordre de trois fois le libre parcours moyen.

De plus l'angle de coupure $\theta_c$ que l'on a défini par la relation (31) est dans le cas du cuivre (n = 1)

$$\theta_c = 0,8\theta_B$$

Les électrons diffusés par un seul plasmon resteront donc dans le cône d'ouverture du faisceau que l'on peut estimer à $\theta_B$.

L'angle de diffusion maximum étant faible, les phénomènes par plasmons interviendront peu dans le calcul de l'absorption.

Le potentiel imaginaire V'(r) est donc essentiellement dû aux diffusions thermiques.

Ainsi d'après la relation (34)

$$V'_g = \left( \frac{c}{v} \right)^2 V'_o e^{-ag^2}$$

avec $a = 0,0225\ \text{Å}^{-2}$

Cette relation, proposée dans sa forme générale par Humphreys et Hirsch [77], rend compte dans une bonne approximation des valeurs déterminées par Hall et Hirsch [76] pour le cuivre à 293 K. Elle donne des résultats assez différents de ceux obtenus à l'aide des $V'_g$ calculés par Whelan [71] et Radi [72], qui surestimaient nettement le terme d'absorption normale $V'_o$ caractérisant les interactions

électroniques.

b) Position symétrique

A basse tension, cette orientation correspond à une mauvaise pénétration. A 100 kV le coefficient d'excitation du champ d'onde (1) qui a une interaction maximum avec les atomes du cristal, est toujours supérieur à 0,85 pour toutes les réflexions. Ainsi plus de 70 % des électrons dont l'orientation correspond à la position symétrique auront une probabilité très forte de diffusion inélastique. (Planche XII a)

Quand la tension augmente le phénomène évolue lentement.

Les courbes de pénétration associées à cette orientation montrent que : (Planche XIII)

- Pour les indices (111)&(200) la pénétration passe par un maximum pour des tensions environ trois fois supérieures à la tension critique associée à la réflexion considérée.

Expérimentalement cette bonne pénétration est observée à partir de 1 MV. Elle s'améliore jusqu'à 2 MV (Planche XIV).

Notons que sur la courbe théorique de pénétration associée à la réflexion(111)on observe une diminution de la pénétration pour les très hautes tensions (> 2MV). (Planche XIII). Ceci est dû à l'augmentation de $\mu^{(3)}$ qui passe par un minimum vers 1500 kV (Planche XII c).

Une amélioration de la pénétration est observée pour des tensions de l'ordre 4,5 MV. Elle est associée à la décroissance de $\mu^{(5)}$ et à l'augmentation de $c_o^{(5)}$ (Planche XII c, a). C'est le champ d'onde (5)qui fournit l'intensité à ces tensions.

Pour les réflexions de hauts indices (220) et (311) nous n'avons pas obtenu théoriquement et expérimentalement d'intensité utilisable aux fortes épaisseurs (Planche XVI). Les système de franges d'interférences sont ceux des basses tensions.

c) Position de Bragg du premier ordre

A basse tension cette orientation fournit une bonne pénétration pour toutes les réflexions. Dans ce cas en effet le champ d'onde (2)a un coefficient $\mu^{(2)}$ d'atténuation minimum qui augmente à partir de 500 kV pour devenir important aux très hautes tensions.

Le coefficient d'excitation $c_o^{(2)}$ qui lui est associé est une fonction décroissante de l'énergie. Il perd de sa valeur au profit des coefficients d'excitations d'indices plus élevés.

Pour des tensions supérieures à 750 kV la pénétration devient mauvaise pour les réflexions d'indices faibles (111) et (200) Expérimentalement nous avons mis ce point en évidence sur des échantillons en forme de coin courbé; on le remarque particulièrement bien sur les champs sombres obtenus en sélectionnant la tache (111) pour des tensions allant de 500 kV à 2,5 MV.

Une amélioration de la pénétration est cependant notée à 2,5 MV où de nouveau une intensité est visible pour l'orientation considérée (Planche XIV). Ce point prévu sur nos courbes de pénétration s'explique en remarquant que le $4^e$ champ d'onde a un coefficient d'atténuation $\mu^{(4)}$ qui décroît avec la tension et devient faible devant $\mu^{(2)}$ pour des tensions de l'ordre de 1,5 MV. De plus $c_o^{(4)}$ devient supérieur à $c_o^{(2)}$ pour une tension de 1,750 MV (courbes de la planche XII). Cette remarque est aussi valable pour la réflexion (200).

Nous avons remarqué dans le paragraphe précédent que la pénétration en position symétrique pour des réflexions de hauts indices était mauvaise quelle que soit la tension accélératrice des électrons. De façon analogue les pénétrations associées aux réflexions de hauts indices (220) et (311) resteront bonnes pour la position de Bragg du premier ordre (Planche XVI).

Ce phénomène s'explique en remarquant que les effets de hautes tensions ne deviennent importants qu'à des tensions très grandes devant la tension critique.

Ce problème est examiné en annexe (3) ; on cherche les tensions pour lesquelles les différentes réflexions des rangées systématiques d'indices différents auront pour une même orientation de Bragg ($s_{2g}$ = o par exemple) des écarts à l'angle de Bragg équivalents (par exemple, $s_{n(111)} = s_{n(200)}$ etc...)

Ainsi on montre que l'on se trouve dans les mêmes conditions d'orientations pour la réflexion (111) à 300 kV et (220) à 1 MV.

Une autre façon de voir les choses est de remarquer simplement que ces coefficients de couplage $U_g$ sont d'autant plus faibles que l'indice est élevé et que la tension est réduite.

d) Pénétration utile

Comme nous l'avons signalé le gain de pénétration

très appréciable de 100 kV à 1 MV devient réduit pour des tensions supérieures. Nous avons mesuré dans du cuivre-silicium des épaisseurs traversées par les électrons de l'ordre de 1,7 μ (± 0,2 μ) à 3 MV pour une réflexion (111), (Planche XVI). Il semble que les résultats soient analogues pour les réflexions (200).

Les mesures que nous avons réalisées sur les indices plus élevés semblent donner des valeurs plus faibles, mais la technique d'étude était différente. Nous faisions comme Coulomb et Col[84] des images d'échantillons paraissant épais lors de l'observation sur l'écran. Dans ce cas les meilleures valeurs étaient de l'ordre de 1 μ.

Pour déterminer les épaisseurs nous utilisions ici les défauts d'empilement du cuivre-silicium qui permettent de suivre l'évolution de l'épaisseur à environ 15 % près.

Ces résultats semblent conformes aux prévisions de nos calculs, mais il est probable qu'une étude plus systématique de ces orientations de hauts indices permettraient d'améliorer ces résultats.

2) Etude de la pénétration dans l'aluminium

L'aluminium est un métal léger, transparent aux électrons. Une épaisseur de 7μ a été mesurée à 2,5 MV pour une position cinématique proche de la réflexion (111) (Planche XVII). Cette détermination a été réalisée au moyen de fibres de Béryllium qui traversent l'échantillon. L'alliage eutectique Al - Be, dont la solidification unidirectionnelle entraîne la formation de fibres de Beryllium a été fabriqué par Trottier et Graf[85] (Planche XVII b, c.)

Comme pour le cuivre on note une nette amélioration de la pénétration quand la tension passe de 0,1 MV à 0,5 MV.

a) Forme de V'(r)

D'après la relation (33 b) qui montre que le coefficient d'atténuation dû aux phonons est proportionnel à $Z^2$, la diffusion thermique est environ cinq fois plus faible dans l'aluminium que dans le cuivre.

Le libre parcours moyen des interactions par plasmons déterminé par la relation (42) est égal à 3260 Å pour une tension accélératrice égale à 1,2 MV, la valeur expérimentale[70] est de l'ordre de 3500 Å. L'angle de coupure des diffusions par plasmons est donné par la relation (31)

$$\theta_c = \sqrt{6}\,\theta_{111}$$

$\theta_c$ est donc supérieur à l'angle d'ouverture d'un faisceau dont la taille a été délimitée par un diaphragme de contraste de 20 μ qui correspond à haute tension à une ouverture de $10^{-3}$ radian environ (86)

Ainsi dans l'aluminium dès la première diffusion par plasmons, les électrons peuvent être déviés hors du faisceau incident et donc absorbés.

Comme l'épaisseur maximale traversée est de l'ordre de 20 libres parcours moyens les interactions électroniques auront un rôle très important dans l'absorption. En utilisant les composantes de Fourier du potentiel V'(r) calculées par Whelan et Radi il est possible de rendre compte assez correctement des effets de pénétration.

b) Position symétrique

Contrairement aux métaux lourds (cuivre, or) nous n'avons pas observé une bonne pénétration pour cette orientation quelles que soient la réflexion et la tension et en particulier pour la réflexion (111) (planche XVIII);

L'intensité en position symétrique est essentiellement fonction des champs d'ondes (1) et (3) :

$$I_o = \left(\sum_{1,3} (c_o^{(i)})^2 \exp - i\,(\Delta k^{(i)} + \mu^{(i)})z\right) \times C.C$$

Pour des tensions inférieures à 1 MV aucun système de franges n'est observé en position symétrique. Dans ce cas $c_o^{(1)}$ et $c_o^{(3)}$ sont assez différents comme le montre la courbe a) de la planche XX. Nous avons en effet :

$$(c_o^{(1)})^2 \sim 0{,}7 \quad ; \quad (c_o^{(3)})^2 \sim 0{,}3$$

Les champs d'onde ne peuvent donc entraîner de battement visible et donner ainsi un système de franges.

Au-dessus de 1,5 MV $c_o^{(1)}$ et $c_o^{(3)}$ ont des valeurs sensiblement comparables (courbe a) de la planche XXI). On observe donc un système d'interférences dont le nombre de franges assez élevé est de l'ordre de 8. Ce système de franges observé expérimentalement permet d'affirmer que les coefficients d'atténuation $\mu^{(1)}$ et $\mu^{(3)}$

ne sont pas très différents.

$$\frac{\mu^{(1)} - \mu^{(3)}}{\mu^{(1)}} \ll 1.$$

en utilisant la définition ( 41 )des $\mu^{(i)}$ on peut écrire cette relation en ne prenant que les premiers termes de la série :

$$\frac{\mu^{(1)} - \mu^{(3)}}{\mu^{(1)}} = \frac{V'_{111}(A^{(1)}_{111} - A^{(3)}_{111})}{V'_o + A^{(1)}_{111} V'_{111}}$$

Comme le montrent les courbes b de la Planche XX donnant les $A^{(i)}_{111}$ en fonction de la tension, on peut observer que :

$$A^{(1)}_{111} \simeq 1 \simeq - A^{(3)}_{111}$$

Si $V'_{111}$ était de l'ordre de $V'_o$, $\mu^{(1)}$ et $\mu^{(3)}$ seraient par contre très différents.

$$\mu^{(1)} \gg \mu^{(3)}$$

Le champ d'onde N°1 serait tout se suite absorbé et il n'y aurait pas de franges d'interférence. Au contraire si les $V'_g$ sont tous très petits devant $V'_o$ $\mu^{(1)}$ et $\mu^{(3)}$ auront des valeurs équivalentes et les systèmes de franges apparaîtront donc.

Dans ces conditions à partir de 1 MV la fonction de pénétration n'évoluera que peu en fonction de la tension, car les $\mu^{(i)}$ seront surtout des fonctions de $V'_o$. Ce point est d'ailleurs montré sur la courbe de pénétration de l'aluminium calculée à partir des potentiels imaginaires de Radi[72] qui donnent des résultats équivalents à ceux de Whelan [71].

c) Position de Bragg du premier ordre

Nous étudions cette position à l'aide du champ sombre qui lui est associé car sa localisation est plus facile qu'en champ clair. En effet, les contrastes sont symétriques par rapport à la position exacte de Bragg qui est ainsi aisément déterminable.

Comme pour le cuivre, la pénétration associée à cette orientation devient mauvaise quand la tension augmente. Ce point est mis en évidence expérimentalement sur la planche XIX où l'on observe que la pénétration est bonne pour 500 kV puis se détériore jusqu'à 1,5 MV. La fonction de pénétration dont la courbe est représentée sur la planche XX montre correctement l'effet.

Cependant par suite des valeurs du potentiel imaginaire l'effet est moins marqué que dans le cuivre.

d) Positions cinématiques

Nous pouvons remarquer sur la planche XVIII que la pénétration des électrons est très bonne assez loin des orientations de Bragg (position cinématique). On explique aisément ce point en remarquant que dans le cas de l'aluminium les coefficients d'atténuation pour une tension donnée dépendent relativement peu de l'orientation. Ceci parce que le terme d'atténuation normale $V'_o$ est très grand devant les $V'_g$. La pénétration dépend donc surtout des coefficients d'excitation des champs d'ondes qui sont très voisins de l'unité hors des positions de Bragg. L'intensité du fond clair cinématique qui ne dépend que d'un champ d'onde s'écrit :

$$I_c = (c_o^{(i)})^4 \, e^{-\mu^{(i)} Z}$$

avec $c_o^{(i)} \simeq 1$ et $\mu^{(i)} \propto V'_o \left(\frac{c}{v}\right)^2$

L'épaisseur maximum traversée s'écrit alors :

$$Z_{\text{cinématique}} \propto -\text{Log } I_{Fc} \; / \; V'_o \left(\frac{c}{v}\right)^2 \propto \left(\frac{v}{c}\right)^2$$

Cette variation est donnée sur la courbe c de la planche XX

3 - Remarque sur les défauts

L'application essentielle de la pénétration est l'étude des défauts cristallins dans des échantillons épais. Nous avons remarqué que pour les métaux comme le cuivre la meilleure pénétration était obtenue à très haute tension pour la position symétrique d'une réflexion de bas indice (111) ou (200). Dans ces conditions il n'y a plus aux fortes épaisseurs qu'un seul champ d'onde qui participe à l'intensité. Les contrastes de défauts sont alors assez faciles à étudier. Les images obtenues sont plus larges que dans le cas cinématique normal ($s_g$ fortement positif) car l'électron (ou le champ d'onde) voit le champ de déformation en entier alors qu'il n'en voit classiquement qu'une partie dans l'autre cas (Planche XIV). Ce point est facilement expliqué à partir des profils des contours d'extinction. L'étude des contrastes de défauts pour des orientations proches des conditions de Bragg dans des échantillons d'épaisseurs intermédiaires nécessitant l'emploi des hautes tensions pourra être délicate. Le nombre de champs d'ondes qui interfèreront sera

important pour des réflexions de bas indices. Cependant l'étude de ces contrastes à l'aide de réflexions de hauts indices((220) (311)) devrait permettre de réduire le nombre d'ondes nécessaire à leur compréhension. Dans ce cas, le contraste sera analogue à ceux dus aux effets dynamiques des basses tensions pour une absorption caractérisée par les hautes tensions utilisées. Cette remarque a été mise en évidence expérimentalement par Coulomb et Coll.[84] qui dans l'acier inoxydable ont remarqué qu'une bonne pénétration existait en réflexion de Bragg pour les indices élevés.

Dans le cas de l'aluminium les positions cinématiques proches fourniront même à haute tension des contrastes de défauts que l'on pourra interpréter aisément. Pour les fortes épaisseurs l'emploi de la théorie dynamique à N ondes telle que nous l'avons appliquée peut ne pas conduire aux résultats escomptés. En effet, le nombre important d'interactions inélastiques peut modifier de façon importante les contrastes observés. Seule une théorie simple pour expliquer des contrastes simples pourra donner des résultats utilisables.

4 - Amélioration de la pénétration

Nous avons utilisé un critère de pénétration qui était en partie basé sur la limitation du rendement des écrans d'observation des microscopes à très hautes tensions. Nous aurions pu en définissant les contrastes directement sur les micrographies améliorer la pénétration utile, mais nous n'aurions plus eu la possibilité de contrôler notre observation sur l'écran. Une amélioration du rendement des écrans, ainsi que la diminution de la diffusion secondaire permettrait d'augmenter [illegible] les épaisseurs utiles.

A partir de la relation (36) :

$$Z = ( -\text{Log } I_{fc/2} + 4 \text{ Log } c_o^{(i)} ) / 2 \mu^{(i)}$$

on voit que la réduction du fond continu et du coefficient d'atténuation permettrait une augmentation de l'épaisseur maximale traversée. Le coefficient $\mu^{(i)}$ est une fonction qui varie en sens inverse de la taille du diaphragme donné le fond continu $I_{fc}$ est une fonction croissante. Un équilibre doit être atteint.

Cependant comme nous l'avons remarqué dans le cas du cuivre, le coefficient $\mu^{(i)}$ est une fonction importante de la diffusion thermique . En diminuant la température, on réduira les effets de cette diffusion et la pénétration utile sera ainsi améliorée. Dans ce cas, les effets d'absorption anormale diminueront et les contrastes observés seront à basse température assez semblables à ceux de l'aluminium à la température ambiante.

L'apport des basses températures semblerait assez faible pour l'aluminium où les phénomènes de diffusion thermique ne sont pas prépondérants. Le filtrage en énergie des électrons pourrait peut-être améliorer la pénétration utile. Cependant le problème serait de savoir si la diminution du fond continu serait plus forte que celle de l'intensité cohérente qui fournit le contraste.

Un dernier point mérite d'être souligné. Plus l'échantillon est épais, plus le nombre de défauts observés sera grand pour une densité de défauts donnée. Il est donc nécessaire de diminuer cette densité pour que l'étude des défauts à très forte épaisseur soit possible.

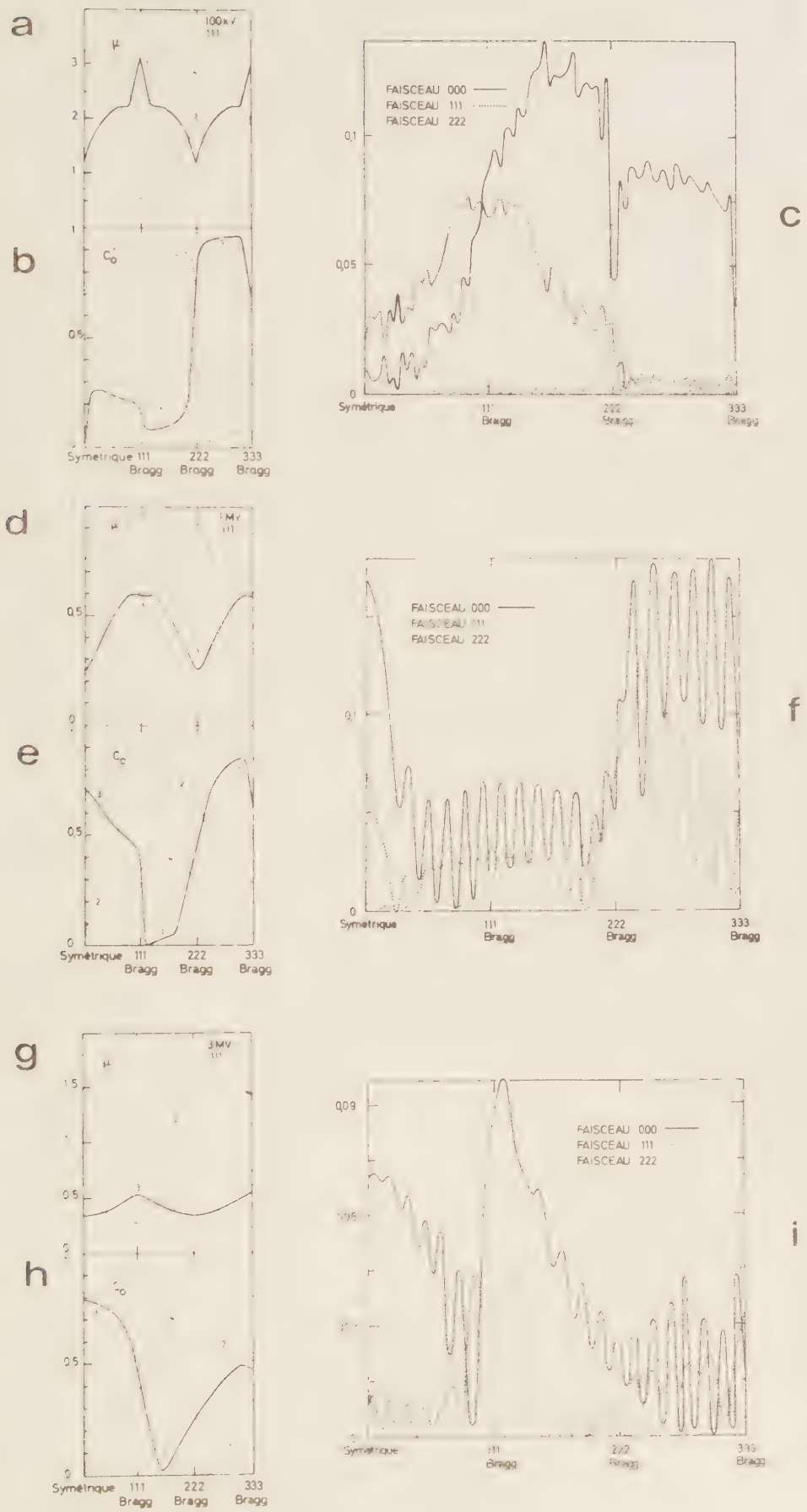
## VI - CONCLUSION

Nous avons montré que la pénétration utile était une fonction importante de la tension accélératrice des électrons jusqu'à des tensions accélératrices de 1 MV par la variation en $(\frac{c}{v})^2$ des coefficients d'atténuation. Au-delà l'évolution de la pénétration est surtout liée à l'occupation spatiale.

Dans le cas du cuivre où les phénomènes localisés jouent un rôle important dans l'absorption une bonne pénétration est observée en position symétrique à haute tension (>1MV) pour les réflexions (111) et (200). Dans le même temps cette pénétration devient mauvaise en position de Bragg du premier ordre.

Pour l'aluminium nous n'avons pas observé de bonne pénétration en position symétrique pour des tensions allant jusqu'à 3 MV. Les diffusions inélastiques associées aux interactions électroniques sont beaucoup plus importantes que les diffusions thermiques. Ainsi les variations de coefficients d'atténuation de $\mu^{(i)}$ seront-elles faibles en fonction de l'orientation et de la tension. Les variations de pénétration seront surtout liées aux coefficients d'excitation $c_o^{(i)}$.

Et la meilleure pénétration sera ainsi obtenue lorsqu'il n'y aura en particulier qu'un seul champ d'onde très fortement excité c'est-à-dire dans le cas cinématique.



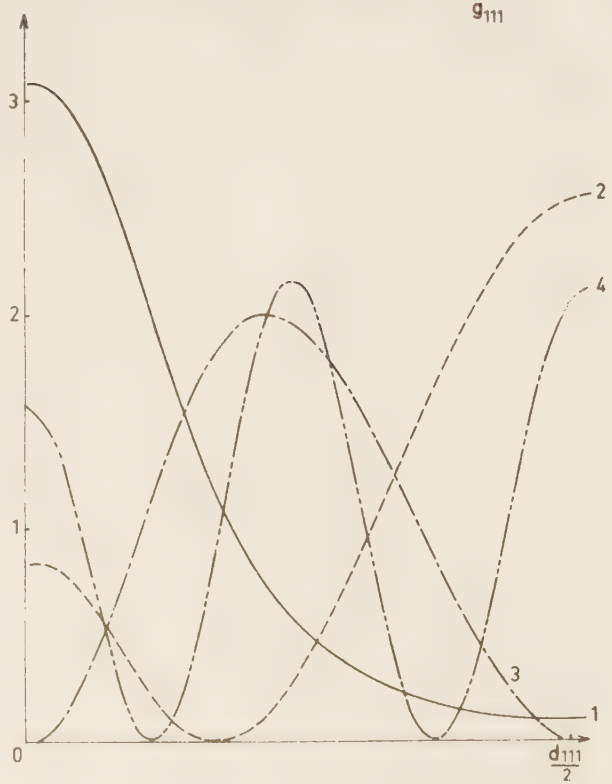

Cuivre

PLANCHE X

PLANCHE XI

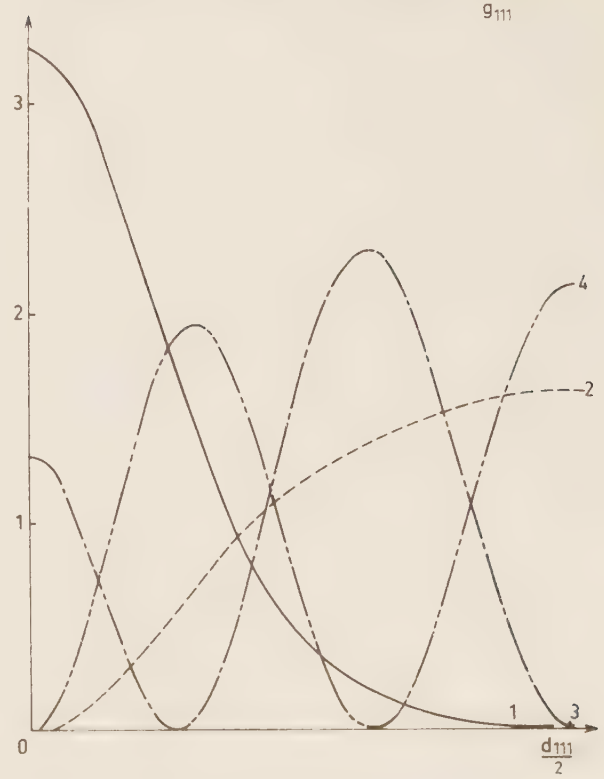
## OCCUPATION SPATIALE

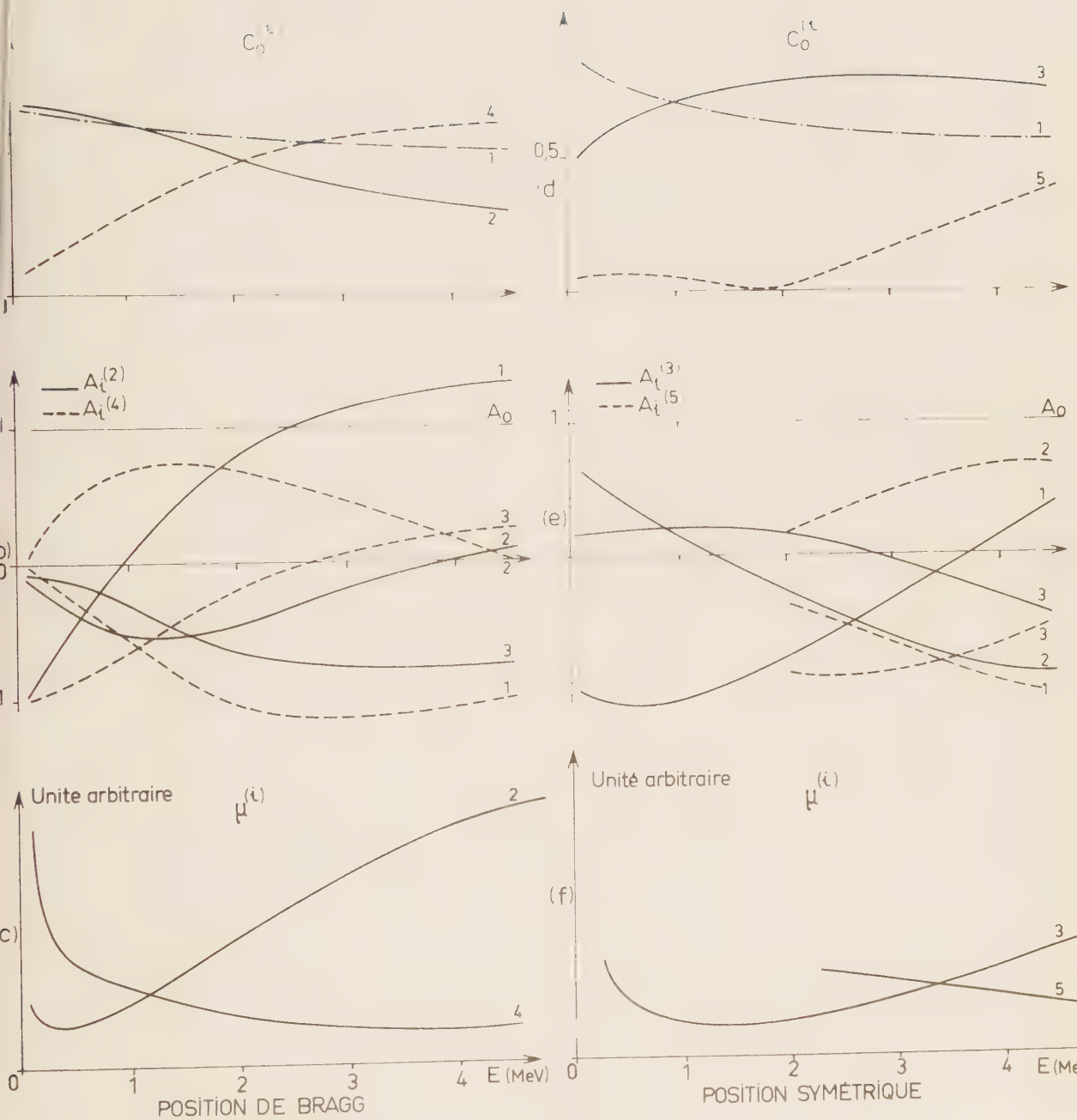
POSITION SYMETRIQUE $\frac{Kx}{g_{111}}=0$




POSITION CINEMATIQUE $\frac{Kx}{g_{111}}=0,25$

POSITION DE BRAGG 1er ORDRE $\frac{Kx}{g_{111}}=0,5$






CUIVRE (111)

PLANCHE _XII

PLANCHE XIII

# FONCTION DE PENETRATION

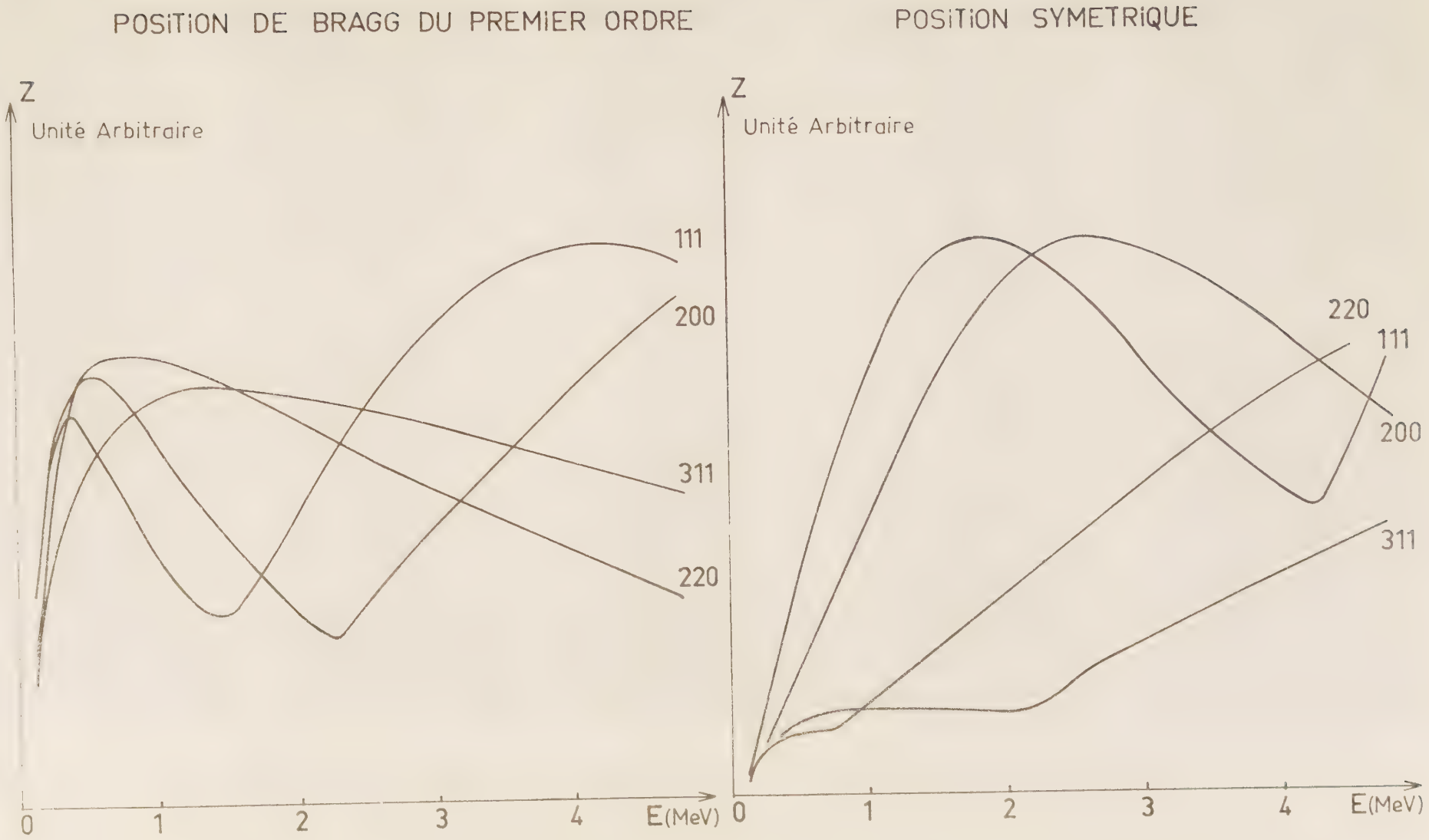
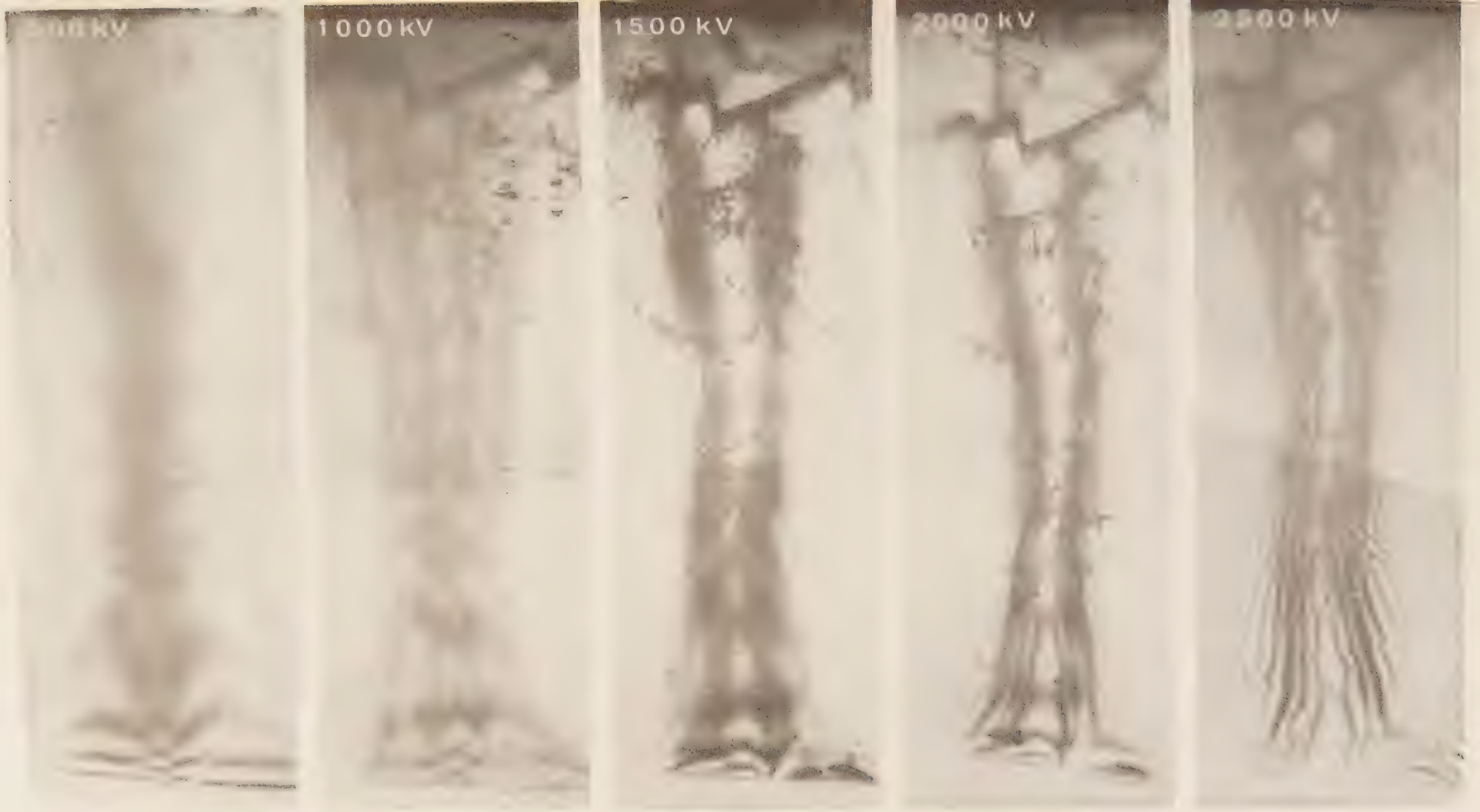


PLANCHE XIV

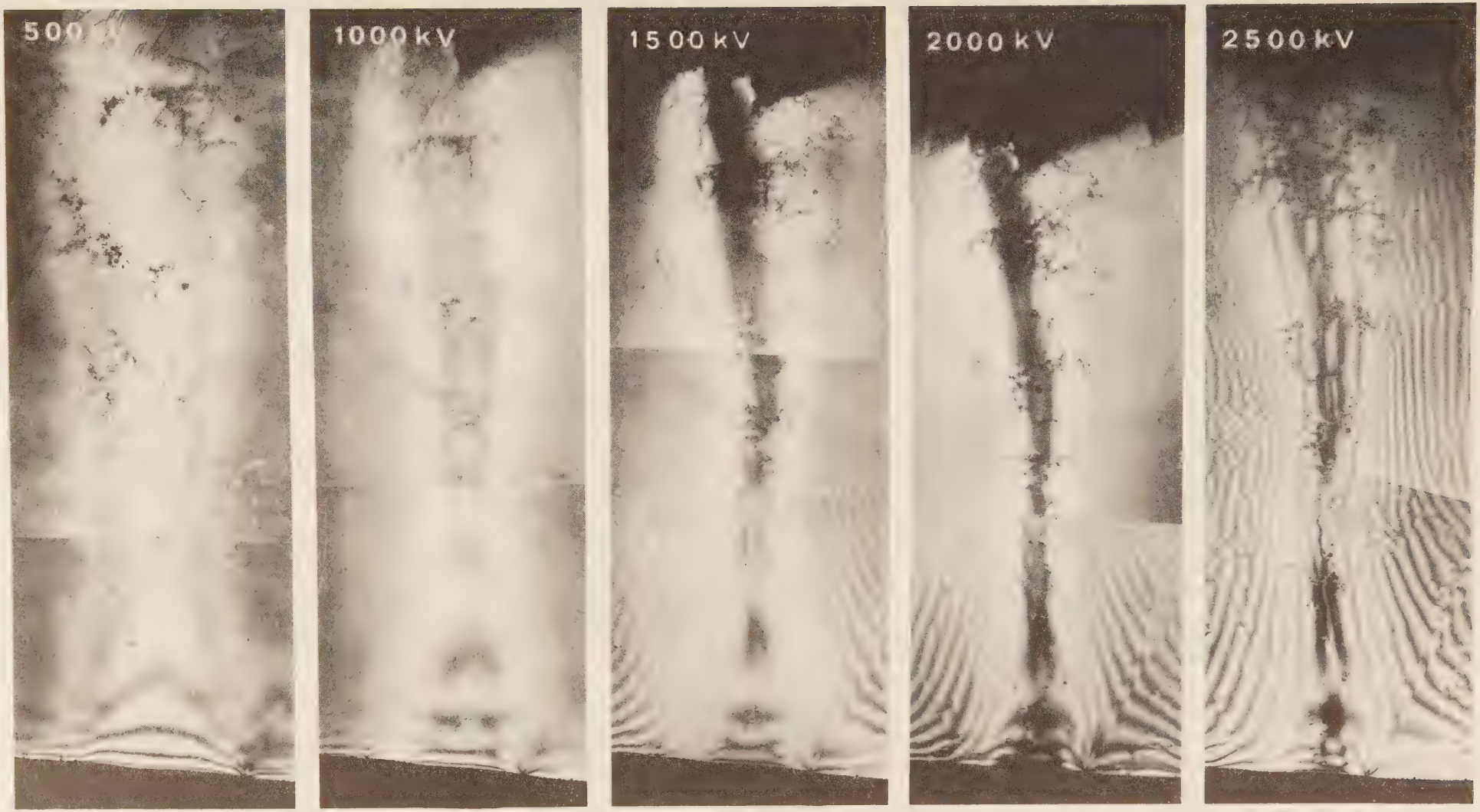



1 μ

PENETRATION : Cuivre

Champs clairs (111)

PLANCHE XV




1 μ

PENETRATION : Cuivre Champs sombres (111

1 $\mu$

V=2500 kV

1 $\mu$

V = 1500 kV

c.s.(220) c.c. c.s.(200)

PENETRATION : Cuivre

PLANCHE XVI

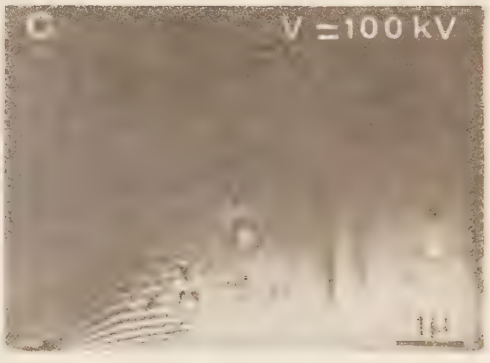
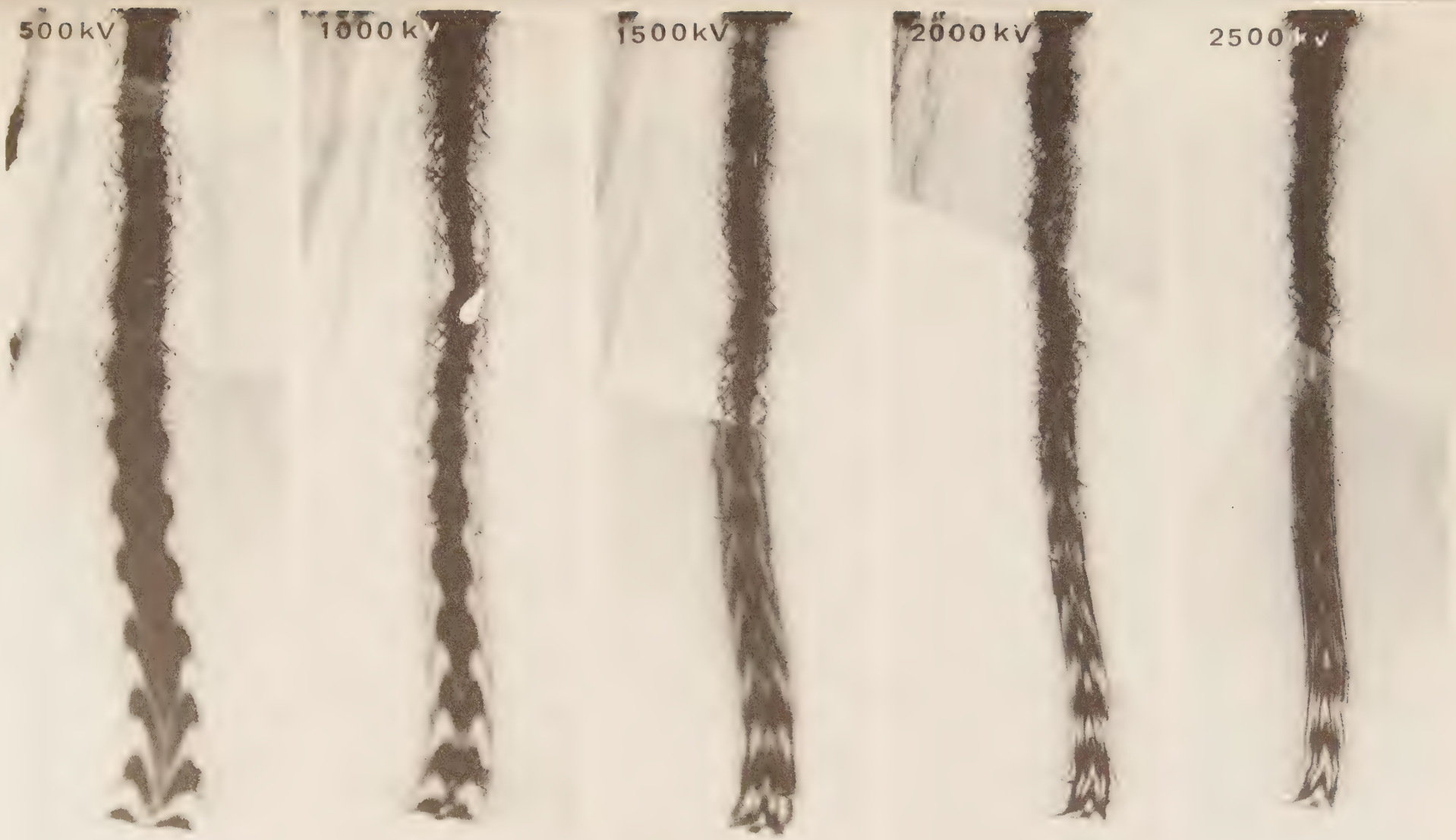



PLANCHE XVII

PLANCHE XVIII

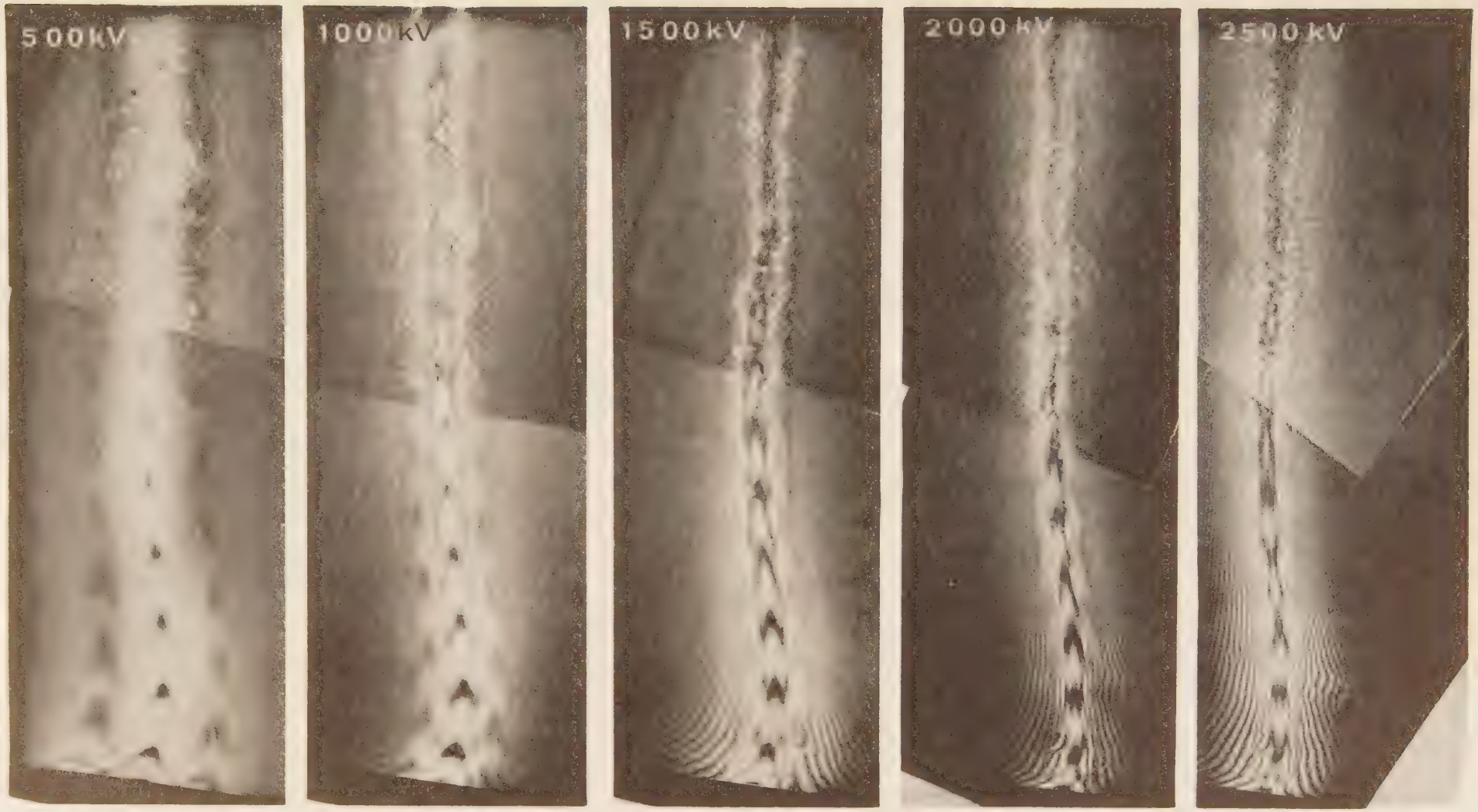



1 μ

PENETRATION : Aluminium

Champs clairs (111)

PLANCHE XIX



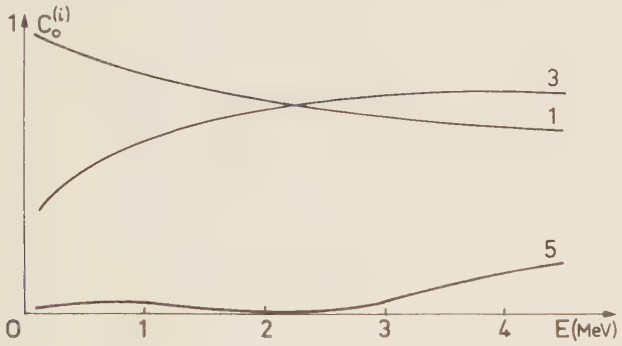

1μ

PENETRATION : Aluminium Champs sombres (111)

## PENETRATION ALUMINIUM REFLEXION (111)

POSITION SYMETRIQUE

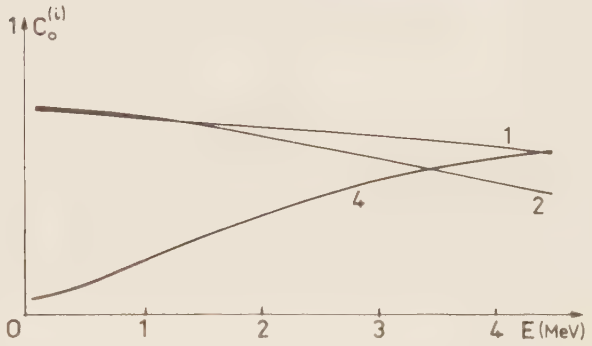
$s_g = s_{-g}$



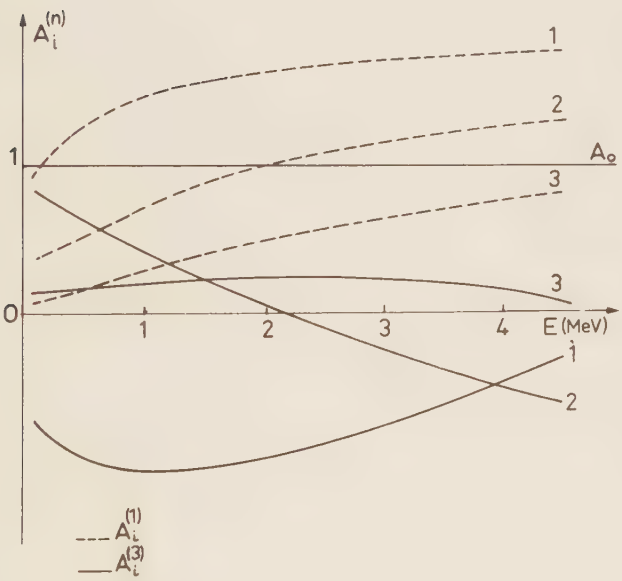

courbe a

REFLEXION DE BRAGG DU PREMIER ORDRE

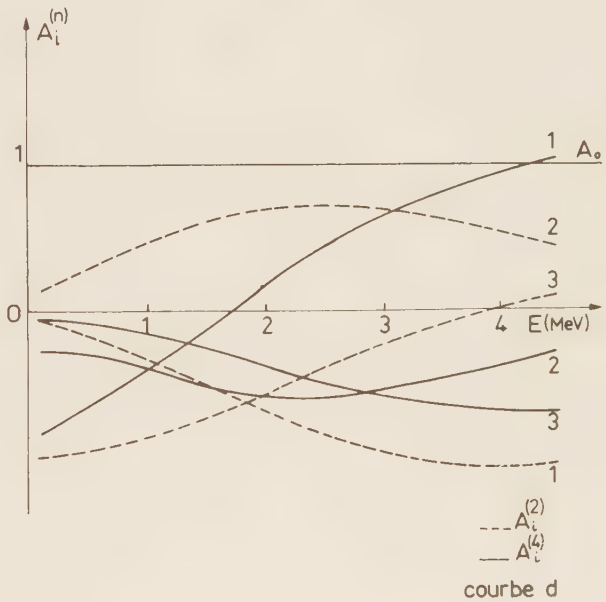
$s_g = 0$



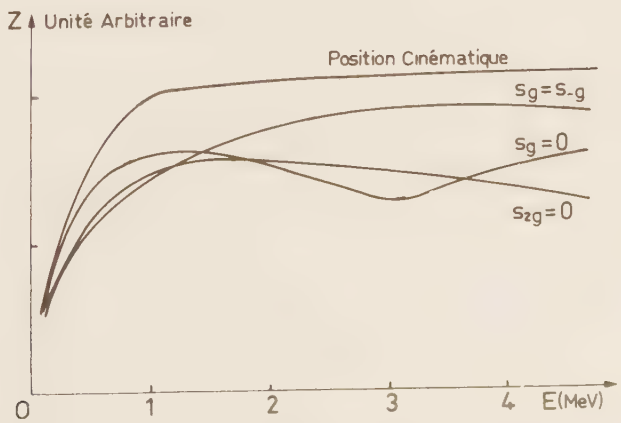

courbe c




courbe b




courbe d




courbe e

PLANCHE XX

## CONCLUSION

Cette étude concernait deux types d'application de la microscopie électronique à très haute tension. Nous avons dégagé plusieurs points intéressants.

Tout d'abord, la théorie dynamique à N ondes permet en général d'expliquer, dans le domaine des tensions que nous avons utilisées (100 kV à 3 MV), les effets d'interférences observés sur les micrographies. Elle donne des résultats très comparables à l'expérience en ce qui concerne les distances caractéristiques des systèmes de franges d'intensité. C'est ainsi que le phénomène de tension critique est correctement expliqué.

La correction des facteurs de diffusion théoriques a été possible puisqu'ils interviennent directement dans la relation de détermination des tensions critiques. Cette étude des facteurs de diffusion s'opère en deux stades :

- le premier consiste à choisir parmi les courbes de facteurs de diffusion théorique déterminés à partir de divers modèles théoriques, celle qui offre la meilleure correspondance entre l'expérience et la théorie ;
- dans le second stade, un ajustement de ces valeurs est effectué sur leur développement analytique des facteurs de diffusion.

Ainsi nous avons corrigé les facteurs de diffusion donnés dans le cas du cuivre par la méthode de Hartree-Fock. La correspondance entre les résultats théoriques et expérimentaux était alors inférieure à 2 %.

Dans ces conditions, les valeurs expérimentales de ces facteurs sont supérieures aux valeurs théoriques au moins pour les diffusions à petit angle. Pour les grands angles où la diffusion est classiquement mieux connue (loi de Rutherford), les valeurs théoriques sont correctement évaluées.

Pour l'Aluminium, les modèles de Thomas-Fermi-Dirac et Hartree-Fock donnent des résultats comparables entre eux qui sont satisfaisants.

Cette méthode, qui permet de tester les facteurs de diffusion, semble donc efficace, mais elle ne permet pas à l'heure actuelle d'étudier les angles inférieurs à l'angle minimum de réflexion $\theta_{111}$.

L'utilisation d'alliages ordonnés pourrait sans doute permettre d'approcher des valeurs d'angles plus petits. Nous envisageons de plus, une étude des tensions critiques en fonction de la température qui permettrait de vérifier d'une part les coefficients de Fourier du potentiel et la validité de la correction de Debye-Waller d'autre part.

Des renseignements, en particulier sur les structures d'alliages pourraient certainement être déduits de ces expériences.

L'autre partie de notre travail a été effectuée dans le domaine de la pénétration appliquée au Cuivre et à l'Aluminium.

Si la théorie dynamique explique d'une manière satisfaisante les phénomènes de battements, les valeurs des intensités calculées ne sont en général pas conformes à la réalité. Les effets des électrons inélastiques sont importants et il est évident que leur traitement par un potentiel imaginaire n'est qu'approché. En particulier, la théorie dynamique ainsi corrigée ne tient jamais compte des électrons diffusés inélastiquement qui reviennent dans le diaphragme de contraste pour participer à la formation de l'image.

Une théorie plus élaborée demanderait une meilleure connaissance des interactions inélastiques. Ainsi les études de pertes d'énergie à haute tension déjà entreprises au laboratoire devraient permettre de mieux comprendre ces phénomènes.

En utilisant comme critère la visibilité des dislocations, nous avons constaté une forte amélioration de la pénétration entre 100 kV et 1000 kV. Cette variation essentiellement liée à celle des coefficients d'atténuation $\mu^{(i)}$ en $(\frac{c}{v})^2$, est effective pour toutes les orientations.

Pour des tensions supérieures, la pénétration ne variera que faiblement en position cinématique où les phénomènes d'interaction inélastiques délocalisés jouent un rôle prépondérant dans les coefficients d'atténuation.

En position de Bragg, l'évolution de la pénétration peut être différente. Ainsi dans le cas du Cuivre, la pénétration en position symétrique (faisceau parallèle au plan réflecteur), mauvaise à basse tension, est bonne pour des tensions supérieures à 1 MV environ. Il y a en effet canalisation des électrons essentiellement par un champ d'ondes. L'épaisseur maximum observée est alors de l'ordre de 1,7 μ.

Au contraire, en position de Bragg du premier ordre, la pénétration est bonne à basse tension et mauvaise à haute tension.

Dans le cas de l'Aluminium, les phénomènes délocalisés ont une influence prépondérante dans l'atténuation des champs d'ondes. Ainsi, quelle que soit l'orientation relative du faisceau par rapport à l'échantillon, la pénétration n'évoluera que peu pour les très hautes tensions.

En particulier, il n'existera pas de bonne pénétration en position symétrique dans l'Aluminium. La meilleure orientation de pénétration est cinématique. Elle donne un seul champ d'ondes fortement excité dont le coefficient d'observation est du même ordre que ceux des autres champs d'ondes. Nous avons, dans ces conditions d'orientation, déterminé une pénétration

de l'ordre de 7μ à 2,5 MV.

L'amélioration de la pénétration peut être envisagée par deux méthodes différentes. Tout d'abord, la réduction des effets de diffusion thermique par l'utilisation des basses températures. Ceci est particulièrement valable pour les métaux lourds. Ensuite l'utilisation des dispositifs de filtrage d'énergie devrait permettre, en éliminant notamment les effets chromatiques, d'atteindre ce but.

Enfin l'étude des défauts ne semble pas dans l'état actuel des choses poser des problèmes extrêmement difficiles étant donné la connaissance que l'on a de la théorie dynamique, le travail déjà réalisé à de plus basses tensions et les résultats obtenus par C. Mory [26] pour les défauts d'empilement.

On peut envisager comme continuation naturelle de ce travail le développement de nouvelles études concernant la pénétration utile et les tensions critiques à des matériaux de structures très différentes de celle utilisée ici, la structure cubique à faces centrées. La mise au point d'accessoires permettra de mener à bien des expériences dans des domaines à l'heure actuelle pratiquement inexplorés, les basses et les hautes températures.

---

## BIBLIOGRAPHIE


1 - MÜLLER H.O. et RUSKA E., 1941. Kolloïd Z., 95, 21-25.

2 - ZWORYKIN V.K., HILLIER J. et VANCE A.W., 1941. J. appl. Phys., 12, 738-742.

3 - DUPOUY G., PERRIER F. et DURRIEU L., 1960. C.R. Acad. Sc., 251, 2836.
DUPOUY G., PERRIER F. et FABRE R., 1961. C.R. Acad. Sc., 252, 627.

4 - DUPOUY G., PERRIER F. et DURRIEU L., 1970. J. Microscopie, 9, 575.
DUPOUY G. et PERRIER F. C.R. Acad. Sc., 274, série B, 1972, p. 1170.

5 - COSSLETT V.E., 1966. Cambridge Research, Nov.

6 - SUGATA E., FUKAI K., FUJITA H., URA K., TADANO B., KINURA H., KATAGIRI S. and OZASA S. Proc. 7th Intern. Cong. on Electron Microscopy, Grenoble, 1970, 1 p. 121.
OZASA S. et al. Ibid 1 (1970) 123.
KATO Y. et al. Ibid 1 (1970) 125.
SAKITANI T. et al. Ibid 1 (1970) 127.

7 - HUMPHREYS C.J., 1972, Phil. Mag. 25, 459.

8 - MAZEL A. et AYROLES R., 1968, J. Microscopie, 7, 793.

9 - NAGATA F. et FUKUHARA A., Jap. J. Appl. Physics, 1967, vol. 6.

10 - UYEDA R., Acta Crystallog., 1968, A.24, 175.

11 - SCHRÖDINGER E., Ann. Phys., 1926, 81, 109.

12 - MESSIAH A., (1964) "Mécanique quantique", Dunod, Paris.

13 - BETHE H.A., Ann. Phys. 1928, 87, 55.

14 - FUJIWARA K., J. Phys. Soc. Jap., 1962, 17, Suppl. B.II, 118.

15 - TERAKURA K., OHTSUKI Y.H. et YANAGAWA S., 1966, J. Phys. Soc. Jap. 21, 10, 1973.

16 - KITTEL C., 1967, "Introduction to solid state Physics", Whiley and Sons, N.Y.

17 - GUINIER A., 1956, Théorie et Technique de la Radiocristallographie, Dunod éd. Paris.

18 - HEIDENREICH R.D., 1964, Fundamentals of transmission Electron Microscopy (Interscience).

19 - SAADA G., 1966, Microscopie Electronique des lames minces cristallines, Masson et Cie, éd. Paris.

20 - JOUFFREY B. et TAUPIN D., Phil. Mag. 1967, 16, 703.

21 - LANNES A., Travail non publié.

22 - HOWIE A. et WHELAN M.J., Proc. Roy. Soc. G.B., 1961, 263-A, p. 217.


.../...

23 - HOWIE A. et WHELAN M.J., Proc. Roy. Soc. G.B., 1962, 267-A, p. 206.

24 - HIRSCH P.B., HOWIE A., NICHOLSON R.B., PASHLEY D.W. et WHELAN M.J., (1965), "Electron Microscopy of thin crystals", London, Butterworths.

25 - GEVERS R., Méthodes et techniques nouvelles d'observation en métallurgie physique, 1972, chap. 10, B. JOUFFREY Editeur S.F.M.E.

26 - MORY C., Thèse 3ème cycle, 1973.

27 - WATANABE D., UYEDA R. et FUKUHARA A., Acta Crystallog. 1968, A.24, 580.

28 - WATANABE D., UYEDA R. et KOGISO M., Acta Crystallog. 1968, A.24, 249.

29 - METHERELL A.J.F. et FISHER R.M., Phys. Stat. Sol., 32, 1969, p. 551.

30 - MAZEL A., C.R. Acad. Sc. 1969, 269, 245.

31 - FISHER R.M., LALLY J.S., HUMPHREYS C.J. et METHERELL A.J.F., Proc. Septième Congrès International de Microscopie Electronique, Grenoble, 1, 1970, p. 107.

32 - LALLY J.S., HUMPHREYS C.J. et METHERELL A.J.F., Phil. Mag., 1972, 25, n° 2

33 - BELL W.L., Conference on Current Developments in High Voltage Electron Microscopy, Monroeville, Pensylvania, U.S.A. ; reported in Micron, 1, 1969, p. 289.

34 - ROCHER A. et JOUFFREY B., 1972, C.R. Acad. Sc., 275, B, 133.
ROCHER A. et JOUFFREY B., Proc. 5th Eur. Congr. on Electron Microscopy, Manchester, 1972, 528.

35 - FAIVRE G., Cours de l'Ecole d'Eté de Villars-de-Lans, 1972.

36 - MAZEL A., Communication privée.

37 - THOMAS L.E., Phil. Mag., 1972, 26, 6, 1447.

38 - DUVAL P. et HENRY L., C.R. Acad. Sc., 1972,
274, p. 684 -
274, p. 732.

39 - THOMAS L.E. et HUMPHREYS C.J., Phys. Stat. Sol. (a), 1970, 3, 5.

40 - VICARIO E., Thèse, 1970, Lyon.

41 - DUVAL P., Thèse, 1973, Orsay.

42 - HOWIE A., Modern Diffraction and Imaging Techniques in Materials Science, edited by Amelinckx S., Gevers R., Remault G. et Van Landuyt J. North Holland.

43 - MARTIN D.G., J. Appl. of Crystallog., 1972, 5, 131.

44 - ROCHER A., Thèse 3ème cycle, Orsay, 1969.

45 - ROCHER A. et JOUFFREY B., J. Phys. Appl., 1969, 4, 525.

.../...

46 - HEAD A.K., Aust. J. Phys., 1967, 20, p. 557.

47 - DOYLE P.A. et TURNER P.S., Acta Crystallog. , 1968, A.24, 390.

48 - COWLEY J.M., Acta Crystallog., 1969, A.25, 129.

49 - HEWAT E., 1972, Proc. 5th Eur. Congr. on Electron Microscopy, Manchester, 526.

50 - YOSHIOKA H., J. Phys. Soc. Jap., 1957, 12, 618.

51 - AYROLES R., MAZEL A. and AJUSTRON F., 1972, Proc. 5th Eur. Congr. on Electron Microscopy, Manchester, 442.
AYROLES R., MAZEL A. and AJUSTRON F., 1973, Phil. Mag. (sous presse).

52 - IBERS J.A., Acta Crystallogr., 10, 1957, p. 86.

53 - IBERS J.A. et VAINSHTEIN B.K., International Tables for X-ray Crystallography, vol. III, 1962, Kynoch Press, Birmingham.

54 - SMITH et BURGE, Acta Crystallogr., 1962, 15, 182.

55 - DOUKHAN J.C. - Communication privée.

56 - EL HILI A., Thèse, 1967, Orsay.

57 - HENOC P., HENRY L. et DUVAL Ph., C.R. Acad. Sc., 1970, 271, 22, 1108.

58 - HENOC P., HENRY L., NATTA M. et CASTAING R., C.R. Acad. Sc., 1967, 265, 1293.

59 - MOLIERE K. (1939), Ann. d. Phys. Lpz. 34, 461.
MOLIERE K. (1939), Ann. d. Phys. Lpz. 35, 272.

60 - ROCHER A., 1972, chap. VII. Méthodes et techniques nouvelles d'observation en métallurgie physique. B. JOUFFREY, 1972, S.F.M.E.

61 - HOWIE A., Phil. Mag., 1966, 14, 223.

62 - MAKIN M.J., Jerkont. Ann., 1971, 195, 509.

63 - MACKINLEY W.A. et FESHBACH H., Phys. Rev., 1948, 74, n° 12, 1759.

64 - MAKIN M.J. et SHARP J., J. Mat. Sc. 1968, vol. 3, 360.

65 - FERREL R.A., Phys. Rev. 1956, 101, 554.

66 - HOWIE A., Proc. Roy. Soc. 1963, 271, 268.

67 - CASTAING R. et HENRY L., C.R. Acad. Sc., 1962, 255, 76.

68 - RENARD D., Thèse, 1973, Orsay.

69 - COLLIEX C. et JOUFFREY B., Phil. Mag. 1972, 25, 491.

70 - SEVELY J., PEREZ J.P. et JOUFFREY B., C.R. Acad. Sc., 1973, 276, 515.

71 - WHELAN M.J., J. Appl. Phys., 1965, 36, 2099.

.../...

72 - RADI G.G., Acta Crystallogr. 1970, 26, 41.

73 - PINES D., Elementary Excitations in Solids, 1964, W.A. Benjamin Inc. New-York.

74 - BURGE R.E. et SMITH C.H., Proc. Roy. Soc., 1962, 79, 673.

75 - JOUFFREY B., Energy Losses of fast electrons in solids, ERICE (1973), International School of Electron Microscopy.

76 - HALL C.R. et HIRSCH P.B., Proc. Roy. Soc., 1965, A. 286, 158.

77 - HUMPHREYS C.J. et HIRSCH P.B., Phil. Mag., 1968, 18, 115.

78 - HUMPHREYS C.J. et WHELAN M.J., Phil.Mag., 1969, 20, 165.

79 - CUNDY S.L., HOWIE A. et VALDRE U., Phil. Mag. 1969, 20, 147.

80 - HUMPHREYS C.J., Phil. Mag., 1972, 25, 1459.

81 - FUJIWARA K., 1962, J. Phys. Soc. Jap., Proc. Intern. Conf. on Magnetism and Crystallography, II, 17, 118.
HOWIE A., 1962, Discussion of FUJIWARA'S paper.

82 - METHERELL A.J.F. et FISHER R.M., Phys. Stat. Sol., 1969, 32, 217.

83 - ASHLEY J.C. et RITCHIE R.H., Phys. Stat. Sol. 1970, 40, 623.

84 - COULOMB P., REYNAUD F. et LASSERRE A., C.R. Acad. Sc., 1973, 276, 41.

85 - TROTTIER J.P. et GRAF R., C.R. Acad. Sc., 1970, 271, 613.

86 - AYROLES R., MAZEL A., MORY C. et ROCHER A., C.R. Acad. Sc., 1973, 276, 793.

# ANNEXE 1

## Programmation

Toute cette étude a été faite à l'aide de calculs sur ordinateur. La programmation de la théorie à N ondes a nécessité de trouver une solution à divers problèmes. C'est ainsi que pour faire l'étude de simples franges d'égale épaisseur, il est nécessaire d'introduire comme données, une cinquantaine de valeurs différentes qui caractérisent :

- le corps étudié : - par son paramètre cristallin
  - sa température de Debye
  - les paramètres définissant son facteur de diffusion.

- les conditions expérimentales :
  - l'énergie des électrons incidents
  - l'orientation du faisceau par rapport au cristal. Réflexion et écart à l'angle de Bragg.
  - température de l'échantillon
  - épaisseur maximale de l'échantillon.

### Précision des calculs

Elle est limitée par le nombre maximum d'ondes utilisées. Cette question est importante car les temps de calculs sont en théorie à N ondes proportionnels à $N^2$

Pour se rendre compte de la validité de nos calculs nous avons utilisé un critère à priori qui permet de limiter le nombre d'ondes intervenant dans la théorie à N ondes.

En théorie cinématique, l'intensité associée à une réflexion g ayant un écart à l'angle de Bragg rapporté à l'origine $s_g$ et une distance d'extinction $\xi_g$ s'écrit :

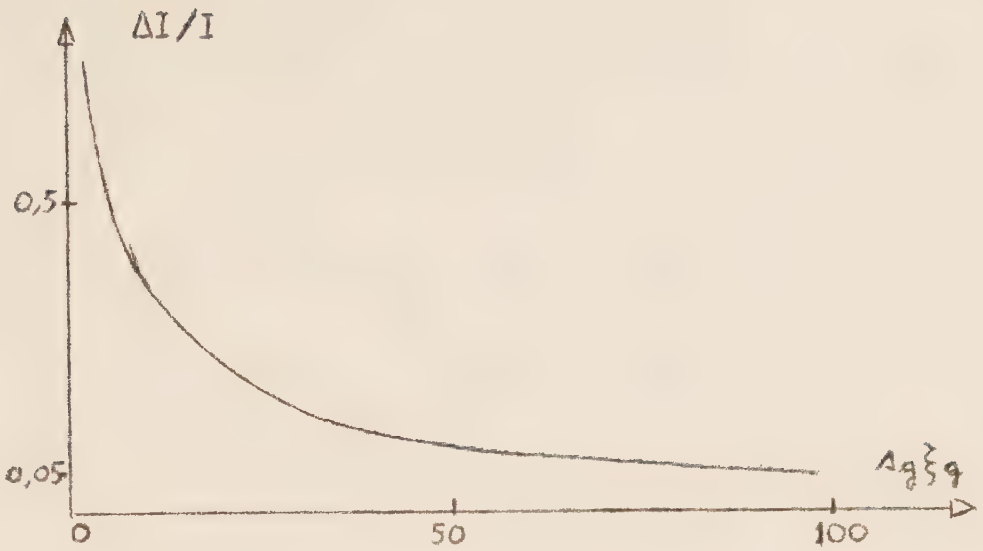
$$I_g = \frac{1}{(s_g \xi_g)^2} = \sin^2 \pi s_g z$$

où est la variable de

Plus le produit $s_g \xi_g$ sera grand plus l'intensité ainsi définie sera faible. Le classement des noeuds du réseau réciproque en prenant pour critère les $s_g \xi_g$ croissants permet de déterminer les ondes peu importantes.

Une valeur supérieure des $s_g \xi_g$ imposée par la précision des calculs demandés permet de limiter le nombre d'ondes .

Ainsi,sur la courbe ci-dessous nous représentons en fonction




de $s_g\xi_g$ les variations de :

$$\frac{\Delta I}{I} = \sum_g \frac{\int | I_g^N(z) - I_g^{N-2}(z) | \, dz}{\sum_g \int I_g^N(z) \, dz}$$

$I_g^N(z)$ et $I_g^{N-2}(z)$ représentent les intensités associées aux franges d'égale épaisseur calculées à N et N-2 ondes pour une orientation donnée. La somme sur g signifie qu' elle est effectuée sur toutes les intensités diffractées.
Le critère est donc extrêmement sévère.

On constate que la courbe construite à partir de divers calculs donne une erreur inférieure à 4 % quand on prend $s_g\xi_g < 100$ Dans le cas où on étudie des phénomènes de contraste, cette précision sera en général suffisante.

Les autres problèmes sont plus liés à la présentation des résultats, les techniques de simulation que nous avons utilisées pour définir les contrastes observés en tension critique, sont classiques. Nous les avions utilisées précédemment et elles avaient été mises au point par Head dans le calcul de contraste de dislocation.

## ANNEXE II

Il est possible de déterminer des couples de tensions et de réflexions ($E_g$, g) tels que les écarts à l'angle de Bragg $s_{ng}$ associés aux noeuds d'une rangée systématique soient égaux :

$$s_{ng} = \frac{k_x^2 - (ng-k_x)^2}{2k_o}$$

$$= \frac{g^2}{2k_o} \left( \frac{k_x^2}{g^2} - (n - \frac{k_x}{g})^2 \right)$$

$k_x$ est le paramètre d'orientation.

$k_n/g$ qui caractérise les écarts à l'angle de Bragg est un nombre sans dimension. La parenthèse est un nombre indépendant de la tension accélératrice des électrons et de la réflexion.

Pour avoir les mêmes écarts à l'angle de Bragg pour deux réflexions différentes

$$s_{ng} = s_{nh}$$

Il faut donc que :

$$\frac{g^2}{2k_o(g)} = \frac{h^2}{2k_o h}$$

$$k_o \alpha \left( \left(\frac{E}{m_o c^2}\right)^2 + \frac{2E}{m_o^2} \right)^{1/2}$$

$$\left(\frac{E_g^2}{(m_o c^2)^2} + \frac{2E_g}{m_o c^2}\right)^{1/2} \frac{1}{g^2} = \left(\frac{E_h^2}{(m_o c^2)^2} + \frac{2E_h}{m_o c^2}\right)^{1/2} \frac{1}{h^2}$$

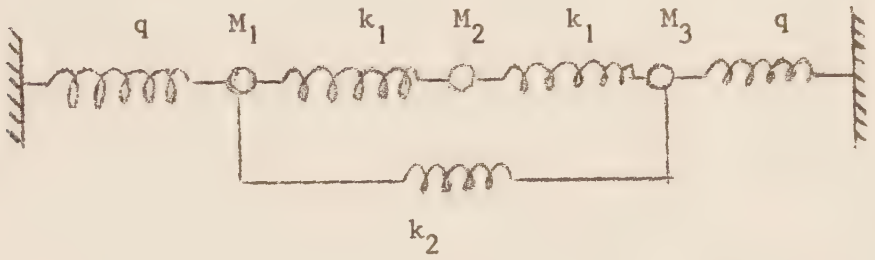
$$E_g = m_o c^2 \left( \sqrt{\frac{g^4}{h^4} \left(\frac{E_h^2}{(m_o c^2)^2} + \frac{2E_h}{m_o c^2}\right) + 1} - 1 \right)$$

Ainsi pour un même corps on retrouvera les mêmes conditions d'orientation pour réflexion (111) à 500 kV et une réflexion(210)à 2000 kV. Réciproquement les conditions d'orientations associées à une réflexion(311)à 500 kV sont équivalentes à une réflexion (111) à 90 kV.

Nous retrouvons ainsi que du point de vue orientations, de hauts indices ont un comportement équivalent à celui de faibles indices pour des tensions beaucoup plus élevées.

## ANNEXE 3

On peut faire une analogie mécanique au phénomène de tension critique en réalisant le montage suivant :




Trois masses $M_1$ $M_2$ $M_3$ de même valeur sont couplées comme l'indique la figure.

$k_1$ entre $M_1$ et $M_2$ et $M_2$ et $M_3$

$k_2$ entre $M_1$ et $M_3$

q entre les masses extrêmes.

Le même ressort à chaque extrémité est équivalent à la condition de Bragg, $M_1$ et $M_3$ ont les mêmes forces de rappel .

Les mouvements propres des masses $M_i$ sont strictement équivalents aux composantes des champs d'ondes $c_g^{(i)}$.

Le système d'équation peut se mettre sous une forme équivalente au problème à trois ondes de la tension critique.

$$\alpha \begin{bmatrix} \lambda^2 & \omega_1^2 & \omega_2^2 \\ \omega_1^2 & \lambda^2 - \alpha^2 & \omega_1^2 \\ \omega_2^2 & \omega_1^2 & \lambda^2 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} x_1^{(i)} \\ x_2^{(i)} \\ x_3^{(i)} \end{Bmatrix} = o$$

avec $\omega_1^2 = \frac{k_1}{M}$ $\omega_2^2 = \frac{k_2}{M}$ $\omega_o^2 = \frac{q}{M}$

et $\lambda^2 = \omega^2 - \omega_1^2 - \omega_0^2 - \omega_2^2$

$\alpha^2 = +\omega_1^2 - \omega_0^2 - \omega_2^2$

A la "raideur critique" le mouvement propre de la troisième masse aura une amplitude minimum, imposée par le fait que deux mouvements propres sont en opposition de phase. C'est un phénomène d'anti-résonnance presque parfait.